



Universidad  
Carlos III de Madrid  
www.uc3m.es

UNIVERSIDAD CARLOS III DE MADRID

## TESIS DOCTORAL

# OPTIMIZACIÓN EFICIENTE DE PROCESOS DE INTERACCIÓN LASER-MATERIA MEDIANTE CONFORMACIÓN TEMPORAL DE PULSOS ULTRACORTOS

**Autor:**

**Inocencio Marcial Galván Sosa**

**Director:**

**Luis Moreno Lorente**

**Director:**

**Javier Solís Céspedes**

DEPARTAMENTO DE INGENIERÍA DE SISTEMAS Y  
AUTOMÁTICA

Leganés, Julio 2014





# TESIS DOCTORAL

## OPTIMIZACIÓN EFICIENTE DE PROCESOS DE INTERACCIÓN LASER-MATERIA MEDIANTE CONFORMACIÓN TEMPORAL DE PULSOS ULTRACORTOS

Autor: Inocencio Marcial Galván Sosa

Director : Luis Moreno Lorente

Director : Javier Solís Céspedes

### Tribunal

Presidente : Fernando López Martínez \_\_\_\_\_

Secretario: Daniel Jaque García \_\_\_\_\_

Vocal : Luis Bañares Morcillo \_\_\_\_\_

Título: Doctorado en Ingeniería Eléctrica, Electrónica y Automática

Calificación: \_\_\_\_\_

Leganés, 27 de Junio de 2014



# Resumen

La interacción de pulsos láser ultracortos en el rango de los femtosegundos con medios materiales da lugar a una amplia variedad de fenómenos de naturaleza no lineal. Dichos efectos dependen de la potencia de pico del pulso y, por ende, de su estructura temporal. Mediante la utilización de métodos experimentales es posible manipular las componentes espectrales del pulso y sintetizar estructuras temporales de complejidad arbitraria. De esta forma es posible modificar el resultado de la interacción.

En el ámbito de esta tesis se ha utilizado como herramienta de conformación temporal del pulso ultracorto un sintetizador de pulsos basado en una configuración del tipo 4f con un modulador espacial de luz (*SLM*) ubicado en el plano de Fourier del sistema. El modulador posee un elevado número de parámetros de control (320 píxeles) que son utilizados para modificar la fase espectral del pulso ultracorto.

Encontrar el perfil temporal óptimo para que el pulso genere o maximice un determinado efecto, sin conocimiento suficiente de la dinámica en la interacción no lineal, hace necesario utilizar un bucle de aprendizaje para resolver el problema. En el mismo, un algoritmo de optimización controla el funcionamiento del *SLM*, usando como retroalimentación la evaluación una medida del efecto de interacción no lineal inducido por el pulso sintetizado. Los algoritmos más utilizados en este escenario, compuesto por un elevado número de variables de control que condicionan una interacción no-lineal con mecanismos subyacentes desconocidos, no modelizados o no modelizables, son los algoritmos evolutivos. Estos últimos son algoritmos estocásticos basados en poblaciones y requieren, por regla general, un elevado número de evaluaciones para alcanzar la convergencia. En los casos en los que la cantidad de recursos existentes es limitada, como puede ser el tiempo de vida en biomuestras fotosensibles o la cantidad de muestra disponible en experimentos de modificación estructural inducida por absorción multifotónica, la aplicación de algoritmos evolutivos puede resultar inviable. Ello hace necesario la utilización de algoritmos eficaces que permitan minimizar el número de evaluaciones requeridas. Atendiendo a determinadas consideraciones topológicas derivadas de estudios de teoría de control cuántico, hemos diseñado un nuevo algoritmo de optimización determinista que hace uso de optimización marginal de la fase en el dominio de la frecuencia. Dicho algoritmo, denominado *Multiple One-Dimensional Search* (*MODS*), presenta una elevada velocidad de convergencia y ha sido validado experimentalmente en interacciones no lineales en sólidos (generación de efecto Kerr y absorción multifotónica), gases (optimización de alineamiento molecular de  $N_2$  atmosférico) y en la nano-escala (optimización de la generación de segundo armónico en nanocristales de  $BaTiO_3$ ). Los resultados obtenidos muestran que MODS supone una alternativa real y eficaz frente a la utilización de algoritmos evolutivos en este tipo de problemas. De forma adicional se ha comprobado la viabilidad del uso de Differential Evolution (DE), un algoritmo evolutivo especialmente eficiente en la optimización de problemas no lineales con elevado número de variables de control y especialmente

robusto frente al ruido experimental. Este algoritmo no se había analizado anteriormente en este tipo de problemas de forma sistemática. El desempeño y robustez de ambos algoritmos, MODS y DE, han sido testados frente al estándar habitual en este tipo de problemas, un algoritmo genético (GA). Los resultados permiten concluir que tanto DE como MODS superan el rendimiento de los GA en este tipo de problemas, siendo MODS órdenes eficiente en cuanto al número de evaluaciones requerida para la convergencia y DE más robusto frente al ruido experimental.



*A Michela y Rita.*





# Agradecimientos

La tesis que tienes entre manos ha sido posible gracias trabajo de mucha gente, es imposible detallar en unas palabras la ayuda y el apoyo que he recibido durante estos años.

En primer lugar gracias a mis directores Javier Solis y Luis Moreno por confiar en mi para poder llevar a cabo este trabajo. Sin su ayuda no habría sido posible mezclar estos dos mundos de la física experimental y la ingeniería.

Gracias a Jan Siegel por tener siempre una mano dispuesta, un gran sentido del humor, y un ratito para charlar. Eres un mago Jan, y haces la mejor fabada del mundo.

Gracias a Wojciech por su inmensa labor de hacer nuestro primer Sintetizador y FROG, los precursores de los sistemas actuales. Y a Javi Hernandez, sin su ayuda no habría sido posible aprender todo lo que he llegado a saber de estos sistemas.

Gracias a Alex Ruiz, por su paciencia infinita mientras me ayudaba, por enésima vez, a alinear el sistema, gracias por hacer fácil lo difícil.

Gracias a los miembros presentes y pasados del Grupo de Procesado por Láser por su acogida e inmensa labor de investigación que realiza, Resalía, Roberta, Giorgio, Jesus, Mario, Ramón, Lorena, Hector, David, Sara, Puerto,... Quiero mostrar mi especial agradecimiento a Carmen Afonso por sus valiosos consejos, a Pepe por sus charlas distendidas y por ser uno de los mejores testigos de boda del mundo, a Miguel Jimenez por ser cada vez mas antisistema y a Fátima que puede resolverlo todo mientras mantiene la sonrisa. Gracias a todos, ha sido muy agradable trabajar con ustedes.

Gracias a la gente de ICFO, Pablo Roque, Nicolás Accanto y Niek van Hulst, por facilitarme el acceso al mundo de los pequeño pequeño. Especialmente a Pablo, por haber estado siempre ahí, con sus consejos y sus ánimos, sin ti no habría sobrevivido. ¡gracias por enseñarme la cara asturiana de la vida!.

Gracias a Rebeca de Nalda y Juan Ortigoso por su inestimable colaboración y ayuda con el alineamiento molecular.

Gracias a Porti, por sus inmensas aportaciones a este trabajo. ¡Aun nos quedan unos cuantos eternos debates pendientes!

Javier Solis merece una mención especial, gracias a ti mi visión del mundo es ahora un poquito mejor. Me has enseñado mucho Javier, gracias.

Y por último gracias a Rita y a Michela, por aguantarme durante todo este tiempo y darme su apoyo incondicional, sin ellas no habría podido llegar tan lejos. Gracias mis niñas.

Madrid, Junio 2014

Marcial Galván Sosa

# Abreviaturas

AE - Algoritmo Evolutivo  
 AG - Algoritmo Genético  
 APD - Avalanche Photodiode  
 B - Barrido  
 CMA-ES - Covariance Matrix Adaptation  
 CPA - Chirped Pulse Amplification  
 D - número de nodos  
 DE - Differential Evolution  
 EE - Estrategia Evolutiva  
 FROG - Frequency Resolved Optical Gating  
 f - Distancia focal  
 $\mathcal{F}$  - Fourier Transform  
 FFT - Fast Fourier Transform  
 fs - Femtosegundo  
 FWHM - Full Width Half Maximum  
 $\gamma$  - Gamma, ángulo de salto de refinamiento  
 GS - Gerchberg-Saxton  
 GW - GigaWatio  
 ICFO - Institut de Ciencias Fotoniques  
 ITO - Indium Tin Oxide  
 km/s - Kilómetros por segundo  
 $\lambda$  - Lambda, longitud de onda  
 MA - Molecular Alignment  
 MEB - Microscopía Electrónica de Barrido  
 MIIPS - Multiphoton Intrapulse Interference Phase Scan  
 MODS - Multiple One-Dimensional Search  
 mJ - miliJulio  
 ms - milisegundo  
 mW - miliWatio  
 $\mu m$  - micrómetro  
 NC - Nano Cristal  
 nm - nanómetro  
 OSA - Optical Spectrum Analyzer  
 pc - probabilidad de cruce  
 pm - probabilidad de mutación  
 QCL - Quantum Control Landscape  
 QCT - Quantum Control Theory  
 rad - Radián  
 S - Salto  
 SA - Simulated Annealing

SG - Seguidor de Gradiente  
SH - Second Harmonic  
SHG - Second Harmonic Generation  
 $\sigma$  - Sigma, distancia de salto  
SLM - Spatial Light Modulator  
TPA - Two Photon Absorption  
TOD - Third Order Dispersion  
V - Voltio



# Índice general

Resumen	I
Agradecimientos	VII
Abreviaturas	IX
<b>1. Introduccion</b>	<b>1</b>
1.1. Introducción . . . . .	2
1.2. Objetivos y metodología . . . . .	7
1.3. Estructura . . . . .	8
<b>2. Fundamentos</b>	<b>11</b>
2.1. Introducción . . . . .	12
2.2. Pulso láser ultracorto y conformación temporal . . . . .	12
2.2.1. Pulso láser ultracorto . . . . .	12
2.2.2. Conformación temporal . . . . .	14
2.3. Efectos ópticos no-lineales . . . . .	16
2.4. Optimización . . . . .	19
<b>3. Soporte Experimental</b>	<b>27</b>
3.1. Introducción . . . . .	28
3.2. Sistema láser . . . . .	29
3.3. Sintetizador de pulsos . . . . .	32
3.3.1. Configuración del sintetizador de pulsos . . . . .	32
3.3.2. El modulador espacial de luz, <i>SLM</i> . . . . .	36
3.3.3. Limitaciones del sistema . . . . .	40
3.4. Caracterización temporal con PG-FROG . . . . .	43
<b>4. Soluciones Propuestas</b>	<b>47</b>
4.1. Introducción . . . . .	48
4.2. Modelo del espacio de control . . . . .	48

4.2.1.	Capacidad de control sobre la fase . . . . .	48
4.2.2.	Espacio de manipulación de parámetros . . . . .	50
4.2.3.	Elección del espacio de búsqueda . . . . .	50
4.2.4.	Codificación de la fase . . . . .	50
4.2.5.	Interpolación de puntos de control de la fase . . . . .	52
4.2.6.	Limitaciones por el número de nodos utilizados . . . . .	55
4.2.7.	Multimodalidad intrínseca . . . . .	55
4.3.	Algoritmo Genético . . . . .	56
4.3.1.	Funcionamiento general . . . . .	57
4.4.	Differential Evolution . . . . .	60
4.4.1.	Funcionamiento general . . . . .	61
4.4.2.	Variantes usadas . . . . .	63
4.5.	Algoritmo propuesto: <i>MODS</i> . . . . .	65
4.5.1.	Bases formales de <i>MODS</i> . . . . .	69
4.5.2.	Descripción del algoritmo . . . . .	70
4.5.3.	Algoritmo <i>MODS</i> completo . . . . .	77
4.5.4.	Ilustración de funcionamiento . . . . .	80
<b>5.</b>	<b>Resultados Experimentales</b>	<b>85</b>
5.1.	Restricciones experimentales . . . . .	86
5.1.1.	Ruido intrínseco . . . . .	86
5.1.2.	Ruidos emergentes. Efectos no deseados de la manipulación de fase . . . . .	91
5.1.3.	Conclusiones . . . . .	95
5.2.	Generación de formas de onda arbitrarias . . . . .	97
5.2.1.	Descripción experimental . . . . .	97
5.2.2.	Resultados experimentales . . . . .	99
5.2.3.	Conclusiones . . . . .	105
5.3.	Compresión de pulsos . . . . .	107
5.3.1.	Absorción de dos fotones . . . . .	107
5.3.2.	Generación de Segundo Armónico en la nano-escala . . . . .	116
5.3.3.	Conclusiones . . . . .	122
5.4.	Alineamiento molecular . . . . .	123
5.4.1.	Descripción experimental . . . . .	125
5.4.2.	Resultados experimentales . . . . .	128
5.4.3.	Conclusiones . . . . .	134
5.5.	<i>FROG</i> con desajuste temporal . . . . .	135
5.5.1.	Descripción experimental . . . . .	135
5.5.2.	Resultados experimentales . . . . .	136
5.5.3.	Conclusiones . . . . .	151



5.6. Visualización del espacio de soluciones . . . . .	153
<b>6. Conclusiones y desarrollo futuro</b>	<b>157</b>
6.1. Conclusiones . . . . .	158
6.2. Desarrollo Futuro . . . . .	160
<b>A. Publicaciones asociadas</b>	<b>161</b>
A.1. Publicaciones y Comunicaciones a Congresos Internacionales relacionadas con el desarrollo y utilización de Algoritmo “Multiple, one-dimensional search” (MODS) . . . . .	162
A.2. Publicaciones y Comunicaciones a Congresos Internacionales relacionadas con la utilización de técnicas de conformación temporal de pulsos ultracortos . . . . .	163
<b>Bibliografía</b>	<b>165</b>



# Índice de cuadros

3.1. Características principales de los dos sintetizadores utilizados. . . . .	34
4.1. Número de puntos de control de fase por cada cuadrante . . . . .	49



# Índice de figuras

1.1. Visión global del problema. Los pulsos láser son estructurados temporalmente mediante la manipulación de su fase espectral. El resultado de la interacción del nuevo pulso conformado, $e_{trial}(t)$ , con nuestro experimento es observado (medido) y esta información es utilizada por los algoritmos de optimización para guiar el resultado hacia nuestro objetivo . . . . .	2
1.2. Imágenes <i>MEB</i> de la irradiación con un pulso por transformada (superior) y el mismo pulso sometido a <i>TOD</i> . El pulso con <i>TOD</i> genera una cráter de un diámetro por debajo de límite de difracción [1] . . .	3
2.1. Campo eléctrico de un pulso de 100 fs <i>FWHM</i> . . . . .	13
2.2. Efectos de una fase cuadrática (a) y cúbica (b) sobre el perfil temporal de un pulso y fase necesaria para obtener una conformación temporal arbitraria determinada (c). Las fases se muestran desenrolladas y enrolladas. . . . .	15
2.3. Ejemplos de espacios de soluciones mono y multimodal. En el caso de la esfera sólo disponemos de un mínimo global. La función <i>Rastrigin</i> posee múltiples mínimos de diferente valor, es multimodal. . . . .	20
2.4. Clasificación de algoritmos de optimización. En azul los principales algoritmos que podemos encontrar en la literatura aplicados a nuestro problema. . . . .	22
2.5. Exploración del espacio de soluciones de una función unimodal mediante los métodos monopunto de <i>paseo aleatorio</i> y <i>Hooke-Jeeves</i> . .	23
3.1. Esquema relacional básico de los elementos que conforman el sistema experimental. El sistema láser proporciona los pulsos que serán modificados por el sintetizador de pulsos. Podemos observarlos gracias al caracterizador de pulsos ( <i>FROG</i> ). Una vez interaccionan en el experimento el optimizador genera las acciones necesarias sobre el sintetizador en base a su observación. . . . .	28

3.2.	Esquema general del sistema de generación y amplificación de pulsos laser de fs empleado. . . . .	29
3.3.	Esquema del camino óptico del haz procedente del oscilador ( <i>Seed Pulses</i> ) en la etapa de amplificación. El pulso es expandido temporalmente (Pulse Stretcher) antes de ser amplificado en la barra de Ti:Zafiro (medio de ganancia), posteriormente es recomprimido (Pulse Compressor) hasta alcanzar los 100 fs <i>FWHM</i> . . . . .	31
3.4.	Esquema simplificado de un sintetizador temporal con configuración de dispersión nula utilizando redes de difracción y lentes. En el centro geométrico del sistema está el plano de Fourier, donde las frecuencias espectrales se encuentran espacialmente separadas. Este es el punto de inserción del modulador de fase. . . . .	33
3.5.	Esquema y configuración real del sintetizador de pulsos implementado. Se utilizan lentes de 1 m de focal. El recorrido interior del haz es de 4 metros (4f). En el montaje experimental el brazo de salida se encuentra plegado por limitaciones de espacio.(Configuración correspondiente al sintetizador 2, cuadro 3.3.1) . . . . .	35
3.6.	Cada una de las componentes de frecuencia experimentan un camino óptico diferente en <i>SLM</i> que podemos modificar a voluntad. De esa forma modificamos la fase espectral en el pulso y su conformación temporal. . . . .	37
3.7.	Distribución física de los píxeles en el SLM. Cada uno posee una ventana de $97\mu m$ con una área opaca de $3\mu m$ . Un 3 % de la energía espectral se pierde en la transmisión . . . . .	37
3.8.	Las partículas nemáticas que conforman el cristal líquido se orientan con el campo eléctrico aplicado, $E$ , entre los electrodos, modificando su eje óptico. . . . .	38
3.9.	Para la calibración del <i>SLM</i> se miden los cambios de intensidad de una fuente de luz monocromática colimada a través del <i>SLM</i> frente a los cambios de voltaje en los píxeles. Antes y después del mismo se han colocado dos polarizadores cruzados a $\pm 45^\circ$ respecto al eje horizontal. De esta forma es utilizado cómo modulador de amplitud, midiendo la transmitancia en función del voltaje aplicado a los píxeles . . . . .	39
3.10.	Curva de cambio de fase inducido en función de la tensión aplicada a los pixeles correspondiente a 799 nm. El desfase mínimo aplicable no es de 0 radianes, la curva presenta una acusada no-linealidad al incrementar el desfase . . . . .	39

3.11. Transmisión del SLM con (superior izquierda) y sin (superior derecha) una fase aplicada (inferior). Los saltos bruscos de fase entre pixeles adyacentes generan una modulación de intensidad que podemos apreciar en forma de sombras. En las imágenes de transmisión podemos distinguir la zona de pixeles, área rectangular central, y los electrodos en la parte inferior y superior. . . . .	41
3.12. Curvas de <i>fase-tensión</i> para longitudes de onda ( $\lambda$ ) entre 790 nm y 810 nm. Cada $\lambda$ es afectada de forma ligeramente diferente por el índice extraordinario. Detalles de las curvas fase-tensión del entorno de fase 0 y fase $2\pi$ , los errores debidos a la utilización de una sola curva de calibración se incrementan al aumentar el cambio de fase inducido . .	42
3.13. Representación esquemática de <i>PG-FROG</i> e implementación experimental. El pulso de entrada es dividido en el de muestreo, que viaja a través de un par polarizador-analizador hasta el espectrómetro, y el de puerta, dotado de un retardo ajustable, que genera el efecto puerta <i>Kerr</i> que permite medir el pulso de muestreo. . . . .	45
3.14. Trazas de FROG típicas. De izquierda a derecha de un pulso por transformada, pulso con trino negativo y pulso con trino positivo [2]. . . .	46
4.1. Puntos de interpolación entre dos nodos adyacentes. Al ser $D < nPixeles$ hemos de estimar el valor de fase que deben adoptar los píxeles entre los D parámetros . . . . .	53
4.2. Exploración de la posición de un nodo. La forma temporal resultante presenta una transición continua con la exploración de la fase (1,2,3). Cuando la diferencia de fase entre dos nodos consecutivos es $> 2\pi$ (4) se genera el enrollado de fases, provocando una discontinuidad de la transición de formas temporales. . . . .	54
4.3. Esquema general de funcionamiento de un algoritmos genético. . . . .	57
4.4. Operación de cruce a nivel de parámetro entre dos individuos A y B. Utilizando dos puntos de cruce y una mascara de cruce se selecciona de que padre va a heredar el hijo los parámetros . . . . .	59
4.5. Vectores diferencia posibles sobre una población de 9 individuos. Estos conforman las perturbaciones posibles aplicables a cada individuo, ponderadas por el factor F . . . . .	62
4.6. Efecto del ajuste marginal de las fases a 0 rad para conseguir un pulso por transformada y su efecto en la generación de segundo armónico [3]	67
4.7. Secuencia de pasos en la optimización de un nodo. Representación en el plano de polar (izquierda) y cartesiana (derecha). En la representación cartesiana se muestra una posible curva de valores de costo, señalando en gris la zona de incertidumbre debida al ruido. . . . .	72

4.8.	Relación espacial entre la amplitud espectral y los nodos de control de la fase. Se muestra una fase cuadrática enrollada. . . . .	75
4.9.	Curvas de convergencia típicas según el tipo de Barrido utilizado (a) y representación del recorrido de los nodos (b). El comportamiento depende de la energía asociada a cada nodo. En secuencial (negro) conforma una sigmoide, random (azul) se linealiza y por energía se maximiza la pendiente inicial (rojo). . . . .	76
4.10.	Simulación de la optimización de <i>SHG</i> . La fase generada por <i>MODS</i> se añade a un espectro gaussiano que posee cierta fase residual, el objetivo de la optimización es obtener la fase que maximice el valor del observable $\propto \int  e(t) ^4 dt$ . . . . .	80
4.11.	Fase obtenida (rojo) para compensar una fase residual cuadrática (gris) sobre un espectro gaussiano (negro) y fase resultante (azul) utilizando 100 nodos de control. En los extremos espectrales, primeros y últimos píxeles, se producen errores debido a la poca energía disponible y al incremento de velocidad de la fase residual: se necesita una mayor densidad de nodos para ajustarla correctamente. . . . .	81
4.12.	Compresión de un pulso expandido mediante la aplicación de una fase cuadrática. Evolución temporal las soluciones ensayadas por <i>MODS</i> durante la compresión (a) y evolución de la función de mérito durante dos Barridos de ajuste (b). La escala de color indica la intensidad del campo . . . . .	82
4.13.	Evolución temporal de la solución ensayada por <i>MODS</i> en recorrido secuencial con fase inicial plana. Partiendo de un pulso ensanchado por una fase cuadrática, el algoritmo reubica temporalmente la energía espectral disponible. En la zona central del barrido es mas evidente la reubicación temporal de la energía. Se muestra una ventana temporal de 3ps. . . . .	83
4.14.	Evolución temporal de la solución ensayada por <i>MODS</i> en un recorrido secuencial con fase inicial aleatoria. . . . .	84
5.1.	Dispositivo experimental utilizado para determinar las fluctuaciones asociadas a las oscilaciones naturales del láser en energía y duración de pulso. Utilizamos un fotodiodo lineal de <i>Si</i> y un fotodiodo de absorción de dos fotones de <i>GaAsP</i> . . . . .	87
5.2.	Registro de señal del fotodiodo de absorción a dos fotones y de fotodiodo lineal durante una hora, una muestra por segundo. Se aprecian variaciones en la señal <i>TPA</i> no existentes en la señal lineal, debidas a fluctuaciones temporales del pulso . . . . .	88



5.3.	Histograma de las señales lineal (a) y de TPA (b). El histograma de <i>TPA</i> muestra cierta tendencia hacia valores inferiores, indicando la expansión temporal de los pulsos por fluctuaciones de índice del aire en el interior del amplificador . . . . .	89
5.4.	Registro pulso a pulso, mediante la utilización de un boxcar, de la señal del fotodiodo <i>TPA</i> ante cambios repetitivos de fase. Se aprecia el transitorio de alineación del cristal líquido en el <i>SLM</i> y el ruido existente en la señal. . . . .	90
5.5.	Trazas de <i>FROG</i> que muestran la modulación de amplitud consecuencia de la aplicación de fases planas de diferentes valores. Es especialmente notable para una fase de 5 radianes. . . . .	92
5.6.	Efecto de la modulación de amplitud en el espectro del pulso. Se utilizan una fase compuesta por 50 nodos posicionados a 0 rad excepto el nodo 25 que se sitúa a 5 rad. Se aprecian cambios en la energía espectral asociada al cambio de fase. . . . .	93
5.7.	Efecto de una fase aleatoria con y sin enrollado de fases. Los saltos bruscos de fase generan pérdidas de energía espectral y distorsión temporal del pulso. . . . .	94
5.8.	Feedback de <i>MODS</i> durante un barrido y optimización de mérito. La modulación de amplitud hace que cualquier cambio introducido en la fase empeore la señal. Se puede apreciar el contorno espectral. . . . .	95
5.9.	Esquema del bucle de optimización utilizado para testar los algoritmos. La fase generada por el algoritmo es añadida a un espectro sintético. Se aplica entonces un observador, en este caso el <i>ECM</i> de la forma temporal generada y la objetivo, que nos devuelve la señal de evaluación. . . . .	99
5.10.	Pulso objetivo y resultado de aproximación conseguida mediante el algoritmo de Gerchberg-Saxton . . . . .	100
5.11.	Curvas de convergencia de <i>DE</i> en la optimización frente a los parámetros <i>F</i> y <i>C</i> , para 50 y 200 nodos. Mapas interpolados de bondad de la solución obtenida en función de los parámetros evaluados. La línea naranja indica el resultado alcanzado por <i>GS</i> . . . . .	101
5.12.	Comportamiento de <i>MODS</i> utilizando 50 y 200 nodos, partiendo de fase plana=0 rad. y aleatoria $[0, 2\pi)$ , utilizando recorridos secuencial, aleatorio y por energía de los nodos. El recorrido por energía resulta más efectivo en todos los casos, 50 nodos son insuficientes para la conformación de fases. Se incluyen líneas visuales para la comparación de los resultados y tiempos de convergencia entre 50 y 200 nodos. . . . .	102

5.13. Comparación entre todos los resultados obtenidos. las evaluaciones requeridas por <i>MODS</i> para igual número de parámetros se han marcado con un rectángulo gris sobre <i>DE</i> , así cómo una guía visual del mejor resultado alcanzado. El resultado de <i>GS</i> coincide con el alcanzado por <i>MODS</i> utilizando 200 nodos y barrido por energía . . . . .	103
5.14. Mejores aproximaciones al objetivo temporal. <i>GS</i> y <i>MODS</i> obtienen un resultado similar, <i>DE</i> se aproxima a la solución, pero aún está lejos de poder considerarse una buena solución. . . . .	104
5.15. Soluciones obtenidas por <i>MODS/320/p/s/3-3-3</i> comparadas con el resultado de <i>GS</i> al generar dos formas de onda compuestas por 7 y tres pulsos. Los resultados son esencialmente iguales. . . . .	105
5.16. Mecanismo de la absorción a dos fotones. Cada fotón individual no posee la energía suficiente para forzar la transición entre la banda de valencia y la de conducción del semiconductor. La energía resultante de la absorción simultánea de dos fotones permite la promoción del electrón a su estado excitado. Estos dos fotones provienen de la banda espectral del pulso de excitación. . . . .	108
5.17. Respuesta espectral de absorción del fotodiodo G1115, donde se observa que no posee absorción en 799 nm. Curva de calibración de respuesta no-lineal del fotodiodo de <i>TPA</i> G1115 respecto a la del fotodiodo lineal. El ajuste de la respuesta ajuste (rojo) $S = 0,4I^{2,2}$ , esencialmente cuadrático. . . . .	109
5.18. Sistema experimental para la compresión de pulsos expandidos en el amplificador . . . . .	110
5.19. Trazas de <i>FROG</i> de los pulsos iniciales, con trino de diferente signo, pulso optimizado y curvas de convergencia. Se muestra traza integrada (autocorrelación de tercer orden) de <i>FROG</i> (azul) y la correspondiente a un pulso comprimido del amplificador (rojo discontinua). . . . .	111
5.20. Fases recuperada a partir de las trazas de <i>FROG</i> de los pulsos expandidos y comprimidos y fases de compensación obtenidas. La línea verde horizontal indica la posición del <i>SLM</i> frente a las fases recuperadas. .	113
5.21. Sistema experimental utilizado para la compresión de pulsos distorsionados mediante plasma en aire. La ruptura dieléctrica se genera utilizando un telescopio 2:1 previo al sintetizador de pulsos. El control de la energía del pulso se realiza mediante un iris de apertura variable.	113

5.22. Trazas de FROG de los pulsos iniciales bajo diferentes condiciones de generación de plasma (plasma 1, plasma 2), pulso optimizado y curvas de convergencia. Se muestra la energía temporal integrada de las trazas de FROG (traza azul) y la correspondiente a un pulso comprimido del amplificador (traza roja discontinua). Curvas de convergencia asociadas a ambas optimizaciones . . . . .	114
5.23. Fases recuperada a partir de las trazas de FROG de los pulsos expandidos y comprimidos y fases de compensación obtenidas. . . . .	115
5.24. Sistema de experimental utilizado en la optimización de <i>SHG</i> sobre nanocristales. Fuente láser (1), sintetizador de pulsos (2), microscopio confocal (3) . . . . .	117
5.25. Espectro de salida del sistema láser utilizado (negro), junto con su fase residual (rojo discontinuo) y la fase que presenta una vez se ha optimizado mediante <i>MIIPS</i> [4] . . . . .	118
5.26. Nanocristales de $BaTiO_3$ similares a los utilizados en la optimización de <i>SHG</i> . Imágenes de microscopio electrónico de barrido. . . . .	119
5.27. Curva de optimización e imagen confocal (a), del <i>NC</i> sujeto de la optimización de <i>SH NC</i> (circulo blanco). Espectro original y espectro después de la optimización (b). . . . .	120
5.28. Fase de compensación (rojo) y fase del pulso (azul) una vez aplicada la fase de compensación. Se ha incluido una guía visual sobre la fase residual resultante, que es básicamente una fase plana con cierta pendiente, indicativa de un desplazamiento temporal del pulso. . . . .	121
5.29. Curva de optimización e imagen confocal (a) del <i>NC</i> sujeto de la optimización de <i>SH</i> . Espectro original y espectro después de la optimización (b). . . . .	121
5.30. Esquema del ángulo $\theta$ entre el eje de polarización del campo $\vec{E}$ y la molécula diatómica. . . . .	124
5.31. Señal de alineamiento para las moléculas diatómicas de $N_2$ (a), $O_2$ (b) y $CO$ (c). El alineamiento ha sido inducido mediante un pulso de 110 fs a 799 nm con una intensidad de $6 \times 10^{13} W/cm^2$ [5] . . . . .	125
5.32. Montaje experimental para la generación y medición del alineamiento molecular. La polarización del pulso de muestreo es perturbada por el alineamiento que genera el pulso de excitación. Las polarizaciones de los pulsos de muestreo y excitación están posicionadas a $45^\circ$ . Estos cambios de polarización son detectados en el espectrómetro. . . . .	126
5.33. Mapa del alineamiento molecular y traza de energía espectral integrada. Se han marcado los diferentes tiempos de recurrencia que se observan para las moléculas de $N_2$ y $O_2$ . . . . .	127

5.34. Mapa de alineamiento de referencia y su señal integrada correspondiente a un pulso de 250 fs con trino positivo, utilizado como referencia para la optimización mediante 50 nodos. Se ha marcado los tiempos objetivo de optimización correspondientes al efecto Kerr (a) y al primer $\frac{T_{rec}}{2}$ del $N_2$ (b) . . . . .	128
5.35. Optimización de efecto Kerr inicial a -700 fs de $t = 0$ utilizando 50 nodos. Mapa de alineación (a), señal integrada (b), fase obtenida (c) y curva de optimización (d) . . . . .	129
5.36. Optimización sobre $\frac{T_{rec}}{2}$ del $N_2$ mediante la utilización de 50 nodos. Mapa de alineación (a), señal integrada (b), fase obtenida (c) y curva de optimización (d) . . . . .	130
5.37. Mapa de alineamiento correspondiente a un pulso de 250 fs con trino positivo, referencia para la optimización mediante 25 nodos. Se ha marcado los tiempos objetivo de optimización correspondientes al efecto Kerr (a) y primer $\frac{T_{rec}}{2}$ del $N_2$ (b) . . . . .	131
5.38. Optimización de efecto Kerr inicial a -700 fs de $t = 0$ utilizando 50 nodos. Mapa de alineación (a), señal integrada (b), fase obtenida (c) y curva de optimización (d) . . . . .	131
5.39. Optimización sobre $\frac{T_{rec}}{2}$ del $N_2$ mediante la utilización de 50 nodos. Mapa de alineación (a), señal integrada (b), fase obtenida (c) y curva de optimización (d) . . . . .	132
5.40. Trazas de <i>FROG</i> de los pulsos original y optimizado correspondientes a la optimización de $N_2$ en $\frac{T_{rec}}{2}$ sobre 25 nodos y pulsos temporales resultantes. . . . .	132
5.41. Volumen focal del área de interacción, posee una extensión de $\approx 60 \mu m$ <i>FWHM</i> a lo largo del eje de propagación y $\approx 3 \mu m$ <i>FWHM</i> en la cintura de haz . . . . .	133
5.42. Representación esquemática de los pulsos de excitación y muestreo en un sistema de <i>FROG</i> con los brazos desbalanceados. El pulso de muestreo y excitación se hayan separados 1 ps, de forma que su interacción sobre el medio no-lineal ( <i>sf57</i> ) es mínima . . . . .	136
5.43. Curvas promedio de los algoritmos probados. En promedio, <i>MODSa</i> alcanza el mismo nivel de optimización que el <i>AG</i> pero utilizando un número de evaluaciones 8 veces menor. . . . .	137
5.44. Todas las curvas de convergencia de todos los algoritmos . . . . .	138
5.45. Todas las evaluaciones de un lanzamiento de <i>MODSp</i> frente a un lanzamiento del <i>AG</i> al que se le ha permitido realizar 5000 evaluaciones (1 evaluación por segundo). Se aprecia cómo la evolución de <i>AG</i> sigue a las fluctuaciones de energía a medio plazo del láser. . . . .	140

5.46. Comparativa visual de todas las fases obtenidas en cada lanzamiento por los algoritmos. <i>MODSp</i> obtiene el mismo tipo de fases en cada lanzamiento. La fase aleatoria inicial de <i>MODSa</i> hace que exista una mayor variedad en las soluciones. <i>AG</i> presenta un resultado diferente en cada lanzamiento . . . . .	140
5.47. Trazas de <i>FROG</i> de la mejor y peor solución obtenida por <i>AG</i> y <i>MODS</i> . Las soluciones obtenidas por <i>MODSa</i> son de calidad comparable en todos los casos, mientras que el <i>AG</i> presenta una considerable dispersión de energía. . . . .	141
5.48. Curvas promedio de convergencia, junto con todas las curvas de convergencia obtenidas por <i>MODS</i> y <i>AG</i> . . . . .	142
5.49. Curva promedio de convergencia de <i>MODS</i> junto con todas las evaluaciones realizadas. La evolución de la curva está relacionada con la energía espectral asociada a cada nodo. . . . .	143
5.50. Trazas de <i>FROG</i> de la mejor y peor solución obtenida por el <i>AG</i> y <i>MODS</i> . . . . .	144
5.51. Fase teórica para un doble pulso obtenida por <i>GS</i> (azul ) y fase obtenida experimentalmente por <i>MODS</i> (rosa) . . . . .	145
5.52. Aproximación temporal a un doble pulso con 1ps de separación obtenida por <i>GS</i> y solución experimental de <i>MODS</i> . . . . .	146
5.53. Convergencias <i>DE</i> y <i>MODS</i> . Podemos observar la diversidad en el comportamiento de <i>DE</i> en cada lanzamiento, sorprende la diferencia entre las dispersiones de población , cómo la observada entre el 4 y décimo lanzamiento. <i>MODS</i> , pese a partir de fase plana, presenta diferentes puntos de partida, debido al ruido existente en el sistema. . . . .	147
5.54. Trazas de <i>FROG</i> de las mejores soluciones alcanzadas por <i>DE</i> y <i>MODS</i> , así cómo sus intensidades temporales integradas . . . . .	148
5.55. Fases obtenidas experimentalmente por <i>DE</i> y <i>MODS</i> . <i>DE</i> obtiene una fase esencialmente sinusoidal. . . . .	149
5.56. Resultados temporal y de fase obtenidos por <i>MODS</i> en simulaciones en el problema analizado, con y sin presencia de ruido en forma de modulación de amplitud espectral aleatoria de un 10 %. Ante la presencia de ruido la capacidad de toma de decisiones en la optimización marginal se anula y el algoritmo se detiene en una solución intermedia. . . . .	150
5.57. Representación de la secuencia de exploración de los valores de los nodos $\phi_a, \phi_b$ y $\phi_c$ que se ha seguido para muestrear el espacio de soluciones. Reducción a 4 valores por nodo. Los valores de $\phi_a$ no se muestran discretos por claridad de la imagen. . . . .	153

5.58. Registro de medición de los tres nodos a estudio con un muestreo de 40 puntos por nodo, 64000 muestras. Se puede observa cómo en toda la medida existe una sucesión de máximos y mínimo. . . . .	154
5.59. Mapas de soluciones correspondientes a la función de mérito en función de dos de los nodos. La evolución de las imágenes corresponde a la evolución del tercer nodo. . . . .	155
5.60. Visualización del espacio de soluciones realizado a partir de las muestras obtenidas del espacio definido por tres nodos $\Phi_a, \Phi_b$ y $\Phi_c$ . Se muestran el mismo espacio desde tres puntos de vista diferente . . . . .	156

# Capítulo 1

## Introduccion

## 1.1. Introducción

Nuestro problema se encuentra resumido en la Figura 1.1. Se dispone de un pulso láser ultracorto de 100 fs que recorre el sistema experimental con una velocidad de unos 300000 km/s, así que se extiende alrededor de 30  $\mu\text{m}$  en el espacio. Es un paquete de ondas electromagnéticas viajando por el espacio con una longitud de onda central de 799 nm y un ancho de banda de 9.5 nm *FWHM*<sup>1</sup>. Este espectro conforma un pulso láser con una distribución temporal gaussiana de 100 fs *FWHM* y es posible modificar su estructura temporal. Esto se consigue mediante a un  *sintetizador de pulsos*  que nos permite trabajar con el pulso en el dominio de la frecuencia, donde es posible manipular su fase espectral y, posteriormente, devolverlo al dominio temporal. El pulso, una vez modificado, interactúa con la materia en nuestro experimento causando un determinado efecto óptico no-lineal. Utilizando un bucle adaptativo, un algoritmo de optimización observa el efecto de esta interacción y maneja la fase espectral. El algoritmo manipula el flujo de energía que llega a la muestra para conseguir que el efecto producido se acerque al objetivo establecido.

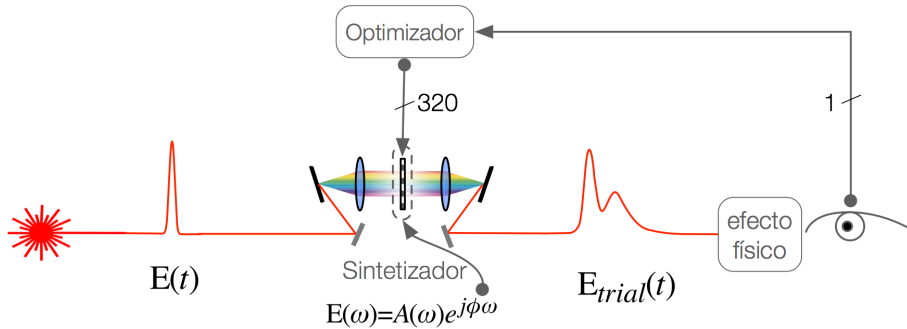


Figura 1.1: Visión global del problema. Los pulsos láser son estructurados temporalmente mediante la manipulación de su fase espectral. El resultado de la interacción del nuevo pulso conformado,  $e_{trial}(t)$ , con nuestro experimento es observado (medido) y esta información es utilizada por los algoritmos de optimización para guiar el resultado hacia nuestro objetivo

¿Que se puede conseguir manipulando temporalmente un pulso láser ultracorto? En la Figura 1.2 tenemos un ejemplo de un efecto inesperado. En la figura se muestra una imagen de microscopía electrónica de barrido (*MEB*) donde se observa resultado de dos irradiaciones sobre sílice vítrea ( $\text{SiO}_2$ ). En la zona superior se ve el efecto producido por un pulso por transformada de 33 fs centrado en 798 nm. En la parte inferior al pulso se le ha aplicado una dispersión de frecuencias de tercer orden

<sup>1</sup>Full Width Half Maximun, anchura a mitad de máximo. En adelante los acrónimos y derivados de expresiones en lengua inglesa se denotan en cursiva



( $TOD^2$ ) generando la conformación temporal que se muestra, un tren de pulsos con envolvente decreciente. El resultado de ambas irradiaciones, para la misma energía de pulso, es muy diferente, obteniéndose un agujero con un diámetro de unos nanómetros...¡conformando el pulso se ha generado un cráter con un diámetro por debajo del límite de difracción!

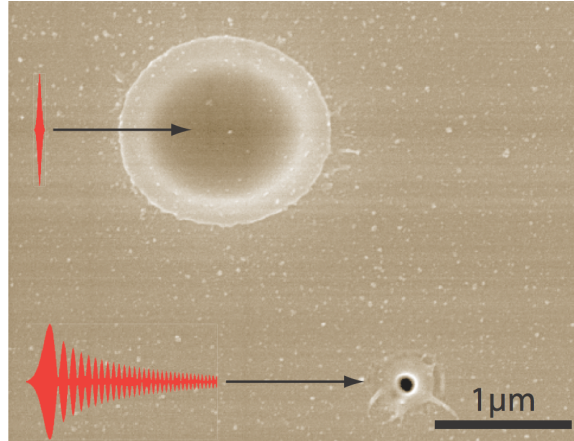


Figura 1.2: Imágenes *MEB* de la irradiación con un pulso por transformada (superior) y el mismo pulso sometido a *TOD*. El pulso con *TOD* genera una cráter de un diámetro por debajo de límite de difracción [1]

La explicación de por qué se produce este fenómeno es muy interesante y está relacionada con que se están modificando los papeles relativos de la ionización multifotónica y de avalancha en el proceso de ablación [1], ambos fenómenos de interacción no-lineal.

Los pulsos láser ultracortos tienen ciertas propiedades que los hacen únicos:

- La energía del pulso se concentra en un lapso de tiempo en el orden de  $10^{-15} s$
- La potencia de pico que alcanzan es extremadamente elevada. Por ejemplo, un pulso de 100 fs con una energía de  $1 mJ$  posee una potencia de pico de  $10 GW$ .
- Geométricamente se extiende por el espacio tan solo unas micras. Un pulso de 100 fs tendrá una extensión espacial de  $\approx 30 \mu m$

Los pulsos láser ultracortos son la expresión temporal de un paquete de ondas electromagnético que posee un gran ancho de banda en frecuencia. Poseen una determinada envolvente temporal (gausiana, secante hiperbólica,...). Utilizando técnicas de

---

<sup>2</sup>Third Order Dispersion

conformación temporal [6] es posible modificar su estructura temporal. Partiendo de un pulso gaussiano podremos sintetizar cualquier forma de pulso. Podemos desplazarlo temporalmente, expandirlo<sup>3</sup>, generar trenes de pulsos o, en general, generar pulsos con cualquier envolvente arbitraria<sup>4</sup>.

El resultado la interacción con un medio material dependerá de las características del material y del pulso de irradiación, su polarización, energía, perfil espacial y perfil temporal. Las intensidades del campo eléctrico y magnético de un pulso ultracorto son comparables a las que experimenta un electrón en las capas profundas de un átomo, en estas condiciones podemos acceder a fenómenos de interacción no-lineales. Estos fenómenos son sensibles a la intensidad de pico del pulso, por lo tanto, mediante la conformación temporal podremos controlar el resultado de la interacción.

La utilización de pulsos ultracortos conformados se ha aplicado con éxito en numerosos procesos y campos. Por citar unos pocos ejemplos podemos encontrar aplicaciones en óptica no-lineal [7], física de estado sólido [8], biología [9], fotoquímica [10] [11], computación cuántica [12] o procesamiento de materiales [13], donde se ha demostrado la posibilidad de utilizar pulsos conformados para la generación de estructuras mas allá del límite de difracción [1] [14].

Para la síntesis de pulsos ultracortos la técnica mas utilizada es la del filtrado en el espacio de frecuencias [15]. El pulso se traslada desde el dominio del tiempo al espacio de frecuencias mediante una transformada óptica de Fourier. Un modulador espacial de luz (*SLM*<sup>5</sup>) actúa como elemento de manipulación de las componentes espectrales de fase, amplitud y/o polarización [6][16]. Utilizando una transformada inversa se devuelve al dominio temporal, donde obedecerá a las modificaciones realizadas sobre el espectro. En esta tesis se utilizara la síntesis de pulsos mediante la modificación de la fase espectral. El *SLM* modifica la fase relativa de las diferentes componentes espectrales que posee el pulso mediante, en este caso, 320 elementos de control de fase independientes, 320 variables a manejar por los algoritmos de optimización para realizar la síntesis temporal.

A la hora de sintetizar los pulsos láser disponemos de tres esquemas posibles para la determinación de la forma temporal.

- *Pre-diseño de pulsos* En los casos en los que la dinámica de interacción sea suficientemente conocida, podremos realizar un diseño los pulsos para poder lograr el resultado deseado. Una vez determinada la forma temporal se puede obtener la fase necesaria mediante algún algoritmo iterativo [17].

---

<sup>3</sup>No podremos comprimirlo, la duración mínima está limitada por su ancho de banda espectral

<sup>4</sup>Naturalmente, limitadas por el ancho de banda y la capacidad de control del dispositivo de síntesis utilizado

<sup>5</sup>Spatial Light Modulator

- *Exploración sistemática* El estudio sistemático del efecto producido por los pulsos láser, cuya estructura temporal se varía siguiendo un determinado criterio [1] [18] [19]. Al igual que en el caso anterior, partiendo de una forma temporal determinada, se obtienen los parámetros para la conformación de pulso.
- *Utilización de un bucle adaptativo* En los casos en los que no disponemos de información acerca del proceso involucrado, el control temporal de los pulsos se realiza mediante un bucle adaptativo (fig.1.1). En el mismo un algoritmo de optimización toma el control del sintetizador y se encarga de guiar el efecto inducido hacia el objetivo deseado.

El esquema en bucle adaptativo es el utilizado en esta tesis y define el objeto de la misma ¿Cómo manipular esas 320 variables para optimizar el efecto que observamos?

En la optimización de fase los algoritmos se enfrentan un espacio de control formado por un hipercubo de 320 dimensiones, con una longitud de arista de  $2\pi$  radianes, que en el sistema experimental utilizado actúa sobre la fase espectral de un pulso con anchura de 9.5 nm *FWHM* centrados en 799 nm. Cada uno de los puntos de este espacio, posibles combinaciones de las variables de conformación de fase, generará una estructura temporal del pulso diferente. Se ha de elegir la adecuada para optimizar el efecto de interacción no-lineal deseado. Si se probaran una a una todas las soluciones posibles<sup>6</sup>, utilizando 1ns para cada ensayo, la edad del universo no sería tiempo suficiente para poder ensayarlas todas. Adicionalmente, en la interacción con el material la cantidad de procesos implicados hacen que en la mayoría de los casos la modelización teórica sea inviable. El papel de los algoritmos de optimización es encontrar la fase que optimiza la interacción.

La primera referencia a la utilización de este esquema para obtener el pulso adecuado la encontramos en el campo de la femtoquímica *Teaching Lasers to Control Molecules*, 1992 [10]. Podemos encontrar ejemplos de bucles adaptativos<sup>7</sup> para la generación de segundo armónico [20](*AG*) [21](*SA*) [3](*EE*) [22] (*EE*) [23](*SG*), compensación de dispersión en fibras ópticas [24](*AG*), absorción de dos fotones [25](*AG*) [26](*DE*), alineamiento molecular [27](*EE*) [28](*AG*) [29](*AG,EE*) o construcción de puertas lógicas cuánticas<sup>8</sup> [30](*AG*) por citar algunos ejemplos.

En relación a la modalidad de algoritmo utilizado, la mayoría de aplicaciones hacen uso de algoritmos evolutivos, en alguna de sus variantes, como elemento de control en el bucle adaptativo. Podemos destacar dos motivos para este hecho. En primer lugar, el elevado número de variables a manejar (las máscaras de control utilizadas en

<sup>6</sup>Cada una de las 320 variables puede adoptar  $2^{12}$  valores diferentes

<sup>7</sup>Se señala junto a la referencia el tipo de algoritmo utilizado, se verán en el capítulo 2.4. Algoritmo genético (*AG*), simulated annealing(*SA*), Estrategia Evolutiva (*EE*), Differential Evolution (*DE*),seguidos de gradiente(*SG*)

<sup>8</sup>Quantum Gates

los sintetizadores de pulso suelen estar compuestas por cientos de elementos). A su vez los efectos a optimizar son derivados de interacción no-lineal y que presentan una gran complejidad en los mecanismos de excitación/relajación implicados. Además en su recorrido a lo largo del sistema experimental el propio pulso sufre de modificaciones temporales. Estas circunstancias hacen que los algoritmos evolutivos sean la opción natural. Los algoritmos evolutivos no hacen asunciones acerca del problema que han de resolver, y tienen la capacidad de manejar un gran número de variables sobre funciones no-lineales. Estos algoritmos también presentan una alta robustez ante la presencia de ruido experimental.

Si bien su aplicación sobre problemas de conformación temporal de pulsos está fuera de toda duda, su funcionamiento hace que sean inherentemente *lentos*. Su velocidad vendrá determinada por el número de observaciones que han de realizar sobre el efecto a optimizar (evaluaciones), típicamente en el entorno de los miles o decenas de miles. Este elevado número de evaluaciones hace que su aplicación en determinado tipo de experimentos sea inviable, especialmente en aquellos donde alguno de los recursos disponibles sea limitado. Por ejemplo, en biomuestras las muestras pueden tener un tiempo de vida relativamente corto. En irradiaciones sobre material, incluso inorgánico, tendremos limitaciones en la superficie disponible y el tiempo de procesamiento necesario,... Múltiples escenarios nos exigen minimizar la ventana de recursos utilizados a lo largo de la optimización, así que la velocidad de convergencia es uno de los parámetros que pueden hacer inviable la aplicación de este esquema de búsqueda.

Se decidió pues inicialmente abordar el problema aplicando una estrategia evolutiva que se ha destacado frente a otros algoritmos evolutivos [31] y poco explorada en este campo, Differential Evolution [32]. A lo largo del desarrollo de la tesis encontramos con algo que no esperábamos. Según diferentes trabajos de Teoría de Control Cuántico ( $QCT^9$ ), el problema podía presentar un espacio de soluciones cuántico ( $QCL$ )<sup>10</sup> con unas características topológicas muy particulares. Ello nos ha permitido desarrollar una aproximación alternativa a la utilización de algoritmos evolutivos. Explorando ese camino hemos desarrollado, implementado y probado un nuevo algoritmo determinista de optimización marginal, al que denominamos *Multiple One-Dimensional Search*<sup>11</sup> (*MODS*), que presenta una elevada velocidad de convergencia y soluciones de alta calidad. Creemos que ofrece una alternativa real y útil en este tipo de problemas, especialmente en aquellas aplicaciones en las que el consumo de recursos sea uno de los factores limitantes.

---

<sup>9</sup>Quantum Control Theory

<sup>10</sup>Quantum control Landscape

<sup>11</sup>Búsqueda múltiple unidimensional

## 1.2. Objetivos y metodología

Hemos visto cómo mediante utilización de un bucle de control adaptativo es posible obtener los pulsos adecuados para mejorar algún determinado efecto de interacción no-lineal. El objetivo final de esta tesis es utilizar esta aproximación para la conformación de pulsos ultracortos en problemas en los que el consumo de recursos sea un factor limitante. Un ejemplo característico sería su uso en la generación de transformaciones estructurales en direcciones predefinidas. En este tipo de modificaciones, inducidas por ejemplo por ionización multifotónica, los recursos disponibles son limitados. La disponibilidad de las muestras y el tamaño de las mismas hace inviable la utilización de métodos con elevado tiempo de convergencia. Ante este escenario la utilización de algoritmos eficientes es fundamental.

Este objetivo global queda desglosado en los siguientes puntos:

- Implementar una configuración experimental para poder llevar a cabo la conformación temporal de los pulsos
- Definir los criterios de optimización y restricciones existentes a la hora de alcanzar los objetivos de optimización
- Seleccionar o desarrollar un algoritmo de optimización eficiente que permita realizar la optimización en un intervalo temporal compatible con la ventana de recursos disponible.
- Ejecución de experimentos de test no destructivos en los que la disponibilidad de recursos no sea una limitación, para poder estudiar el efecto del ruido experimental, eficiencia de exploración, propiedades de convergencia...

En la tesis no hemos abordado la optimización en procesos que impliquen optimizaciones estructurales o experimentos destructivos. Nuestro objetivo, dada la extensión temporal limitada del trabajo, ha sido confirmar la viabilidad de varias aproximaciones, centrando el trabajo principalmente en el algoritmo desarrollado (*MODS*). Se han realizado también experimentos de optimización con un algoritmo evolutivo cuyo uso no se encuentra extendido en el campo (*DE*) y con un *AG*, este último utilizado como referencia.

### Metodología

Se ha desarrollado un sistema de conformación de pulsos ultracortos con capacidad de trabajar con pulsos de 100 fs y 1 mJ de energía.

En el proceso de identificación del algoritmo adecuado para su inserción en el bucle adaptativo, se han encontrado características del espacio de control y topológicas del espacio de soluciones que han posibilitado el desarrollo de un algoritmo propio de optimización. El desarrollo de este algoritmo y su prueba en condiciones reales han determinado en buena medida el desarrollo de la tesis.

De forma adicional se ha comprobado la viabilidad del uso de Differential Evolution (*DE*), un algoritmo evolutivo especialmente eficiente en la optimización de problemas no-lineales con elevado número de variables de control y especialmente robusto frente al ruido experimental. Este algoritmo no se había analizado anteriormente en este tipo de problemas. El desempeño de ambos algoritmos, *MODS* y *DE*, han sido testados frente al estándar habitual en este tipo de problemas, un algoritmo genético (*AG*). Los resultados permiten concluir que tanto *DE* cómo *MODS* superan el rendimiento de los *AGs* en este tipo de problemas, siendo *MODS* mas eficiente en cuanto al número de evaluaciones requerida para la convergencia y *DE* más robusto frente al ruido experimental.

Con el fin de explorar la viabilidad de algoritmo desarrollado se han realizado experimentos de optimización de interacción no-lineal en sólidos, donde se han realizado ensayos que involucran la generación de efecto Kerr y absorción multifotónica. En nano-escala se ha realizado optimización de generación de segundo armónico sobre nanocristal de *BaTiO3*. También se ha analizado la optimización de alineamiento molecular de  $N_2$  en fase gaseosa.

Tanto los algoritmos de optimización como el software de control del sintetizador de pulsos ha sido desarrollado en *Labview 8.2 (National Instruments)*.

### 1.3. Estructura

El contenido de la tesis está distribuido en 6 capítulos, incluido el presente de introducción (*capítulo 1*).

En el *capítulo 2* describiremos los aspectos mas relevantes asociados a los pulsos ultracortos, proporcionando la representación matemática que se utilizará posteriormente para mostrar los resultados. Se mostraran también las bases de la síntesis de formas de onda mediante manipulación espectral y los conceptos básicos de interacción laser-materia en régimen no-lineal. En el terreno de la optimización se descubren las generalidades del problema de optimización y se realizará un recorrido por los diferentes algoritmos que existen para poder abordar este tipo de problemas.

En el *capítulo 3* se describen los elementos que hacen posible la experimentación, se describen las características principales y funcionamiento del sistema de amplificación láser, del dispositivo de síntesis de pulsos y el sistema de caracterización de pulso.

En el *capítulo 4* se detalla la solución que se ha adoptado para trabajar con la fase, así cómo una descripción detallada de los algoritmos evolutivos utilizados experimentalmente, los Algoritmos Genéticos (*AG*) y Differential Evolution (*DE*). Se describe también el algoritmo de optimización desarrollado a lo largo de esta tesis denominado Multiple One Dimensional Search (*MODS*).

El *capítulo 5* corresponde a los resultados experimentales, en el que se describen

- Los principales problemas de ruido existentes en nuestro sistema experimental que dificultan el proceso de optimización.
- Desarrollo de *MODS* y *DE* en la generación de formas temporales con conformación arbitraria
- La Capacidad de *MODS* para realizar compresión de pulsos a partir del rendimiento de un proceso de absorción de dos fotones. Los pulsos son expandidos mediante dos procesos diferentes: trino introducido desde el amplificador láser y distorsión mediante ruptura dieléctrica en aire. Compararemos su resultado con el ofrecido por un *AG*. Se exponen también ejemplos de *MODS* aplicado a la optimización de generación de segundo armónico sobre nanocristales de  $BaTiO_3$ .
- La viabilidad de aplicación de *MODS* en procesos de alineación no adiabática de moléculas de  $N_2$  a temperatura ambiente.
- La capacidad de *MODS* para optimizar el efecto Kerr a través de un laberinto geométrico. Compararemos su resultado con el ofrecido por el *AG* y *DE*.
- Finalmente, se visualizará la estructura topológica del espacio de soluciones en el que los algoritmos se desenvuelven.

El *capítulo 6*, que cierra esta tesis, incluyen las conclusiones del trabajo y el posible desarrollo futuro que se deriva del mismo.

Finalmente se ha añadido un *Anexo* en el que se desglosan las publicaciones mas relevantes asociadas al desarrollo de esta tesis.





# Capítulo 2

## Fundamentos

## 2.1. Introducción

Esta tesis se encuentra a caballo entre dos campos muy diferentes, uno de ellos es la interacción laser-materia, el otro es el de la optimización. Nuestro sistema experimental permite modificar la estructura temporal de los pulsos láser ultracortos, por tanto, es posible estructurar la distribución temporal de su intensidad instantánea. Los fenómenos ópticos cuya respuesta es sensible a la intensidad de la radiación son, precisamente, los de naturaleza no-lineal, cómo la absorción multifotónica o la generación de radiación a frecuencia doble. Este tipo de fenómenos son los sujetos de optimización. Optimizar no consiste en otra cosa sino en encontrar la mejor solución para un problema determinado. Nuestro problema de optimización es cómo, a partir de un observable generado por la interacción no-lineal de un pulso ultracorto con un medio material, ha de estructurarse el pulso para guiar el efecto hacia un objetivo predeterminado.

En este capítulo de fundamentos se introducen los aspectos básicos necesarios para el desarrollo de la tesis en lo concerniente a los pulsos láser ultracortos, la óptica no-lineal y la optimización.

## 2.2. Pulso láser ultracorto y conformación temporal

### 2.2.1. Pulso láser ultracorto

La generación pulsos ultracortos necesita de un gran ancho de banda en frecuencias. para conseguir este ancho de banda se utiliza la técnica de generación de pulsos láser mediante anclado de modos [33]. Básicamente los modos longitudinales permitidos en una cavidad resonante se anclan en fase de forma constructiva, cuantas mas componentes de frecuencia dispongamos dentro del ancho de banda de ganancia, mas corto podrá ser nuestro pulso. Por ejemplo, si disponemos cómo medio de ganancia un cristal de Ti:Zafiro en una cavidad típica de un metro de longitud, para un ancho de banda de ganancia de 650-1100 nm podemos generar pulsos de hasta 5 fs [34][35]. Los pulsos generados mediante anclado de modos poseen energías típicas de unos pocos nano-Julios, pero pueden amplificarse mediante la técnica CPA<sup>12</sup>.

Los pulsos ultracortos generados por nuestro sistema láser están situados en el rango de los femtosegundos<sup>13</sup> (fs), con una envolvente gaussiana temporal de  $\approx 100$  fs FWHM. Espectralmente el pulso presenta una longitud de onda central de 799 nm

<sup>12</sup>Chirped Pulse Amplification, se describe brevemente en el capítulo 3

<sup>13</sup>1 fs =  $10^{-15}$ s

con un ancho de banda de 9.5 nm *FWHM*. En el dominio de la frecuencia, el pulso puede expresarse<sup>14</sup> cómo

$$\tilde{E}(\omega) = \left| E(\omega) \right| e^{i\phi(\omega)} = A(\omega) e^{i\phi(\omega)} \quad (2.1)$$

Donde  $A(\omega)$  es la envolvente de la amplitud espectral y  $\phi(\omega)$  su fase. La relación entre el dominio temporal y el de la frecuencia la obtenemos mediante la transformada de Fourier,  $\mathcal{F}$ , de forma que

$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t) e^{-i\omega t} dt = \mathcal{F}[E(t)] \quad (2.2)$$

y su relación inversa

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega) e^{i\omega t} d\omega = \mathcal{F}^{-1}[\tilde{E}(\omega)] = |E(t)| e^{i\phi(t)} \quad (2.3)$$

Ambas descripciones del pulso (temporal y espectral) quedan definidas mediante su amplitud y su fase. En la Figura 2.1 podemos ver su representación temporal de un pulso de 100 fs *FWHM*, donde podemos observar su campo y la envolvente asociada.

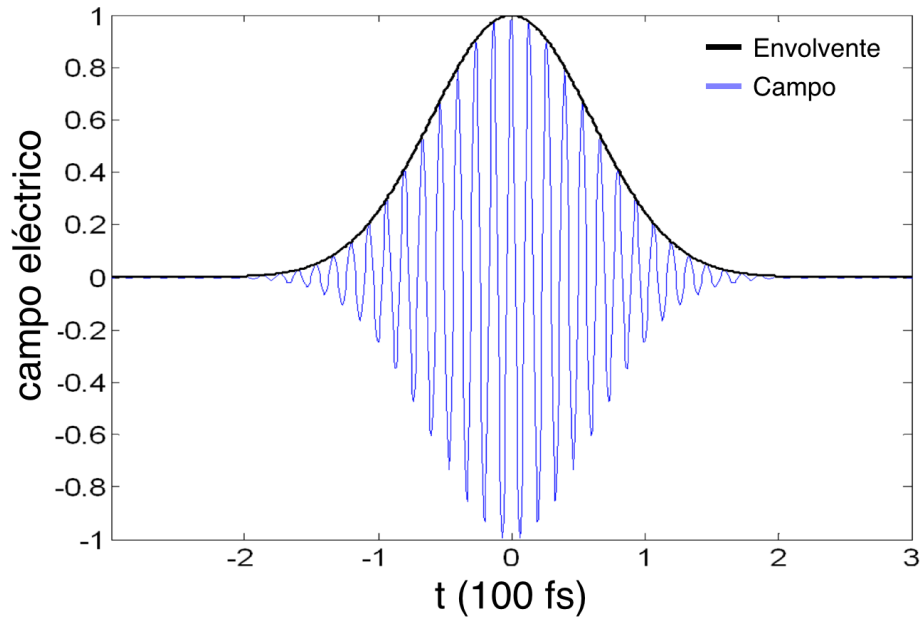


Figura 2.1: Campo eléctrico de un pulso de 100 fs *FWHM*

<sup>14</sup>Para una explicación detallada ver [36]

### 2.2.2. Conformación temporal

Mediante la manipulación de las componentes de amplitud y/o fase espectral podemos modificar la estructura temporal del pulso. Para conseguirlo utilizaremos un sintetizador de pulso, que tiene la capacidad de modificar estos parámetros del campo eléctrico para poder generar formas temporales bajo demanda.

Para describir su funcionamiento podemos tratar el sintetizador de pulsos cómo un sistema lineal. El pulso de salida estará determinado por la convolución del pulso de entrada con la función de transferencia ( $h(t)$ ) del sintetizador.

$$E_{out}(t) = h(t) * E_{in}(t) \quad (2.4)$$

que puede expresarse en frecuencia cómo:

$$\tilde{E}_{out}(\omega) = \tilde{H}(\omega)\tilde{E}_{in}(\omega) = \left| \tilde{H}(\omega) \right| \left| \tilde{E}_{in}(\omega) \right| e^{i\phi_H(\omega) + i\phi_{in}(\omega)} \quad (2.5)$$

En nuestro dispositivo experimental utilizamos un sintetizador de pulsos que únicamente modifica la fase espectral, manteniendo constante la amplitud,  $\left| \tilde{H}(\omega) \right| = 1$ . La fase juega un papel fundamental en la conformación temporal [37], pero la restricción impuesta al renunciar al grado de control que ofrece la amplitud espectral hace que no se puedan alcanzar, por regla general, una conformación temporal exacta del pulso deseado.

El objetivo de los algoritmos de optimización en este problema es encontrar qué  $\phi_H(\omega)$  hay que aplicar para que el resultado de la interacción del campo  $|E(t)|$  con el medio sea la deseada. Experimentalmente se realiza una transformada de Fourier óptica que traslada el pulso al dominio de la frecuencia. Esto permite la utilización de un modulador espacial de luz (*SLM*) para manipular la fase espectral  $\phi(\omega)$ . Una transformada inversa de Fourier óptica devuelve el pulso al dominio temporal, conformando  $|E(t)|$  según la fase aplicada.

Para hacernos una idea sencilla del efecto de la fase espectral sobre el perfil temporal del pulso podemos expresarla cómo una serie de Taylor de forma que

$$\phi(\omega) = \phi_0 + \phi_1\omega + \frac{\phi_2}{2!}\omega^2 + \frac{\phi_3}{3!}\omega^3 + \dots \quad (2.6)$$

La componente de orden cero,  $\phi_0$ , nos proporciona información de la posición de la portadora sobre la envolvente del pulso, pero no afecta a su conformación, cómo tampoco lo hace la componente de orden uno,  $\phi_1(\omega)$ , que genera un desplazamiento temporal del pulso. La componente cuadrática,  $\frac{\phi_2}{2!}$ , también conocida cómo dispersión de la velocidad de grupo (*GDD*<sup>15</sup>), genera un incremento en la duración del pulso al introducir un incremento lineal en la frecuencia instantánea de la portadora del

---

<sup>15</sup>Group Delay Dispersion

pulso(fig.2.2.a). Este término es conocido como *trino*<sup>16</sup>; hablaremos de trino positivo o negativo según se adelanten/retrasen las frecuencias altas/bajas. El termino de tercer orden (*TOD*),  $\frac{\phi_3}{3!}\omega^3$ , corresponde a una fase cúbica, genera un tren de pulsos asimétrico(fig.2.2.b).

Al generar una forma arbitraria de pulso (fig.2.2.c) la conformación de fase se vuelve mas compleja. Podemos ver cómo el pulso conformado (rojo) y el pulso objetivo de la conformación (verde) no poseen exactamente el mismo perfil debido a la falta de modulación de amplitud. La fase se ha obtenido mediante un algoritmo de Gerchberg-Saxton<sup>17</sup> [17] que posibilita, dado un perfil temporal objetivo, obtener la fase que es necesario aplicar sobre una amplitud espectral determinada para obtenerlo.

Las fases mostradas en la Figura 2.2 se muestran enrolladas y desenrolladas. El enrollado de fases se puede realizar gracias a la periodicidad del soporte de fase, podemos acotar su expresión a el entorno entre 0 y  $2\pi$  radianes. De esta forma el elemento de control de la fase (*SLM*) del sintetizador sólo necesitará trabajar dentro de dicho rango.

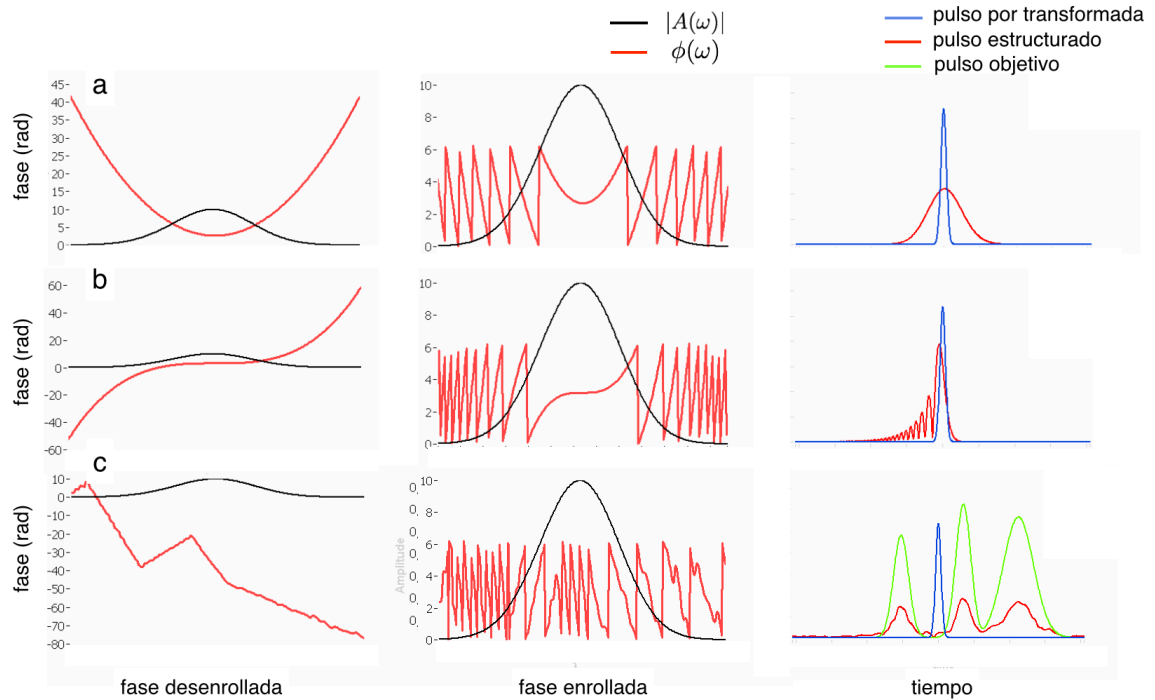


Figura 2.2: Efectos de una fase cuadrática (a) y cúbica (b) sobre el perfil temporal de un pulso y fase necesaria para obtener una conformación temporal arbitraria determinada (c). Las fases se muestran desenrolladas y enrolladas.

<sup>16</sup>chirp

<sup>17</sup>Se vera con detalle en el capítulo5.2

### 2.3. Efectos ópticos no-lineales

Uno de los requerimientos para que el proceso de optimización del perfil temporal del pulso ultracorto sea posible es que la interacción laser-materia sea de tipo no-lineal, este tipo de interacción posee dependencias con la intensidad del pulso y por lo tanto con su estructura temporal. Una descripción exhaustiva de los fundamentos de la Óptica no-lineal queda fuera de nuestro objetivo, por lo que hemos optado por describir en esta sección, de forma muy resumida, los fundamentos de las interacciones que hemos analizado en mayor número. Estas son las de tercer orden no-lineal (asociadas al tensor de susceptibilidad óptica no-lineal,  $\chi^{(3)}$ ), todos los materiales poseen una susceptibilidad de tercer orden  $\chi^{(3)} \neq 0$ . Debido a esta susceptibilidad, para campos suficientemente intensos, el índice de refracción del medio deja de ser constante y depende de la intensidad de la luz que se propaga en su seno (efecto Kerr óptico). En el caso de un haz intenso polarizado linealmente, una consecuencia de lo anterior es que la radiación induce una asimetría en el índice de refracción del medio dando lugar a un efecto de birrefringencia.

De forma general, la respuesta del material ante la radiación electromagnética puede expresarse en términos de la polarización. En régimen lineal podemos relacionar la polarización inducida en el medio ( $\tilde{P}$ ) con el campo aplicado ( $\tilde{E}$ ) mediante el tensor de susceptibilidad óptica de primer orden ( $\chi^{(1)}$ ). La polarización eléctrica que se induce en el material es

$$\tilde{P} = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \tilde{E} \quad (2.7)$$

El efecto combinado de la polarización inducida y el campo aplicado suele describirse en términos del vector desplazamiento  $\tilde{D}$

$$\tilde{D} = \varepsilon_0 \tilde{E} + \tilde{P} = \varepsilon_0 (1 + \chi^{(1)}) \tilde{E} = \varepsilon \tilde{E} \quad (2.8)$$

que es proporcional al campo aplicado a través de la función dieléctrica compleja  $\varepsilon = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2$ , que a su vez está relacionada con el índice de refracción complejo del medio ( $n + ik$ ).

$$\varepsilon_1 = \varepsilon_0 (n^2 - k^2) \quad \varepsilon_2 = \varepsilon_0 (2nk) \quad (2.9)$$

$$n = \sqrt{\frac{\sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} + \varepsilon_1}{2}} \quad k = \sqrt{\frac{\sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} - \varepsilon_1}{2}} \quad (2.10)$$

Donde  $n$  es el índice de refracción del medio y  $k$  su coeficiente de absorción.

Cuando el campo posee intensidad suficiente la polarización deja de ser una función lineal de  $\tilde{E}$ , apareciendo términos anarmónicos en la respuesta óptica del medio. En régimen no-lineal podemos expresar  $\tilde{P}$  mediante una expansión en serie, en la que las

componentes de la polarización están correlacionadas con potencias crecientes de las componentes del campo aplicado, a través de los tensores de susceptibilidad óptica de órdenes sucesivos [38]:

$$P_i = \varepsilon_0 \left[ \sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j + \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} E_j^* E_k + \sum_{j,k,l} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k^* E_l + \dots \right] \quad (2.11)$$

Donde  $\chi^{(n)}$  es la susceptibilidad no-lineal de orden  $n$ . Cuando el material posee alguna de estas susceptibilidades y el campo es lo suficientemente intenso estos fenómenos no-lineales se tornan evidentes. El primer término de la ecuación 2.11 es la susceptibilidad lineal de primer orden de la ecuación 2.7 y está relacionado con el índice de refracción lineal del medio. El segundo término da cuenta de las interacciones no-lineales de segundo orden, es responsable de fenómenos como la generación de segundo armónico y otras interacciones paramétricas. Este término se anula, debido a razones de simetría, en medios isótropos y está presente en materiales no centrosimétricos.

El término asociado al tercer orden puede reescribirse como :

$$P_{NL}^{(3)} = \sum_{j,k,l} \chi_{ijkl}^{(3)} (E_j E_k^*) E_l = \sum_l \tilde{\chi}_{il}^{(1)}(I) E_l \quad (2.12)$$

donde se observa como la polarización de tercer orden adopta la forma de un término similar al de orden uno, con una *susceptibilidad nominal* que depende de la intensidad del campo aplicado. Si expresamos el vector  $D$  como la suma de una componente lineal y otra no-lineal de polarización:

$$\tilde{D} = \varepsilon_0 \tilde{E} + \tilde{P} + \tilde{P}_{NL} = \left[ \varepsilon + \Delta\varepsilon(\chi_{ijkl}^{(3)}, I) \right] \tilde{E} \quad (2.13)$$

nos conduce a un término adicional en la función dieléctrica  $\Delta\varepsilon$  que depende del tensor de susceptibilidad de tercer orden ( $\chi_{ijkl}^{(3)}$ ) y de la intensidad ( $I$ ) del campo aplicado. La ecuación 2.13 puede interpretarse como una dependencia lineal del índice de refracción complejo del medio con la intensidad del campo aplicado. Con ello

$$n = n_0 + n_2 I \quad (2.14)$$

$$k = k_0 + k_2 I \quad \text{o} \quad \alpha = \alpha_0 + \beta I \quad (2.15)$$

donde  $\alpha$  es la absorción del medio. El subíndice 0 corresponde a los términos en ausencia de campo aplicado y el subíndice 2 corresponde a la contribución de tercer orden. El término  $n_2$  se conoce como índice de refracción no-lineal (coeficiente Kerr) del medio, mientras que  $k_2(\beta)$  designa el coeficiente de absorción (o la absorción) no-lineal del medio. Dado que la modificación de índice se produce a lo largo del eje

del campo eléctrico, si un haz polarizado intenso se propaga en un medio anisótropo induce una asimetría en su respuesta óptica. La existencia de diferentes valores de índice en función de la orientación del campo respecto a determinados ejes del medio es un fenómeno conocido en óptica como birrefringencia. Así pues, una primera consecuencia de la dependencia del índice de refracción con la intensidad es la birrefringencia inducida por un haz polarizado intenso [38]. Veremos que este efecto es de especial utilidad para determinar la intensidad y la fase de un pulso ultracorto en la sección 3.4 cuando describamos la técnica de *Polarization-Gating Frequency Resolved optical Gatin (PG-FROG)* [2]. De forma general el efecto óptico Kerr es el origen de una amplia gama de fenómenos ópticos no-lineales entre los que cabe destacar el autoenfoco no-lineal (presente en cualquier medio transparente cuando el perfil espacial del pulso no es plano), la automodulación de fase, y los fenómenos de mezclado de cuatro ondas (*Four Wave Mixing*) [38].

Respecto al término absoritivo no-lineal, en sentido estricto, el coeficiente de absorción no-lineal ( $\beta$ ) de la ecuación 2.15 hace referencia a procesos de absorción de dos fotones. Dado que el coeficiente de absorción es proporcional a la intensidad, la ecuación que rige la atenuación en el medio durante la propagación es:

$$\frac{dI}{dz} = \alpha I = \alpha_0 I + \beta I^2 \quad (2.16)$$

con lo que la potencia absorbida escala con el cuadrado de la intensidad incidente. Esta es la situación de los procesos de absorción a dos fotones (*Two Photon Absorption, TPA*) en fotodiodos que se describen en el capítulo 5.3.1.

Si el proceso involucra la absorción de más de dos fotones ( $k > 2$ ), una descripción formal rigurosa involucra el uso de una susceptibilidad de orden superior ( $2k - 1$ ). Debe destacarse que, aunque similares en el número de fotones involucrados y en sus dependencias (cuadráticas) con la potencia del haz, la absorción de dos fotones (*TPA*) es un fenómeno no-lineal de tercer orden ( $\chi^{(3)}$ ) que ocurre en todos los materiales, mientras que la generación de segundo armónico (*Second Harmonic Generation, SHG*) es un fenómeno no-lineal de segundo orden ( $\chi^{(2)}$ ) que solo puede tener lugar en materiales no-centrosimétricos.

Finalmente, si el medio es no absorbente ( $k \approx 0$ ), las partes real e imaginaria de la susceptibilidad de tercer orden son directamente proporcionales al índice de refracción y a la absorción no-lineal respectivamente,

$$\chi_R^{(3)} = \frac{4}{3} n_0^2 \varepsilon_0 c n_2 \quad (2.17)$$

$$\chi_I^{(3)} = \frac{n_0^2 \varepsilon_0 c \lambda}{3\pi} \quad (2.18)$$



mientras que en medio absorbentes existe un entrelazado entre las partes real e imaginaria de la susceptibilidad de tercer orden y el índice de refracción no-lineal [39]:

$$\chi_R^{(3)} = \frac{4n_0\varepsilon_0c}{3}(n_0n_2 - k_0k_2) \quad (2.19)$$

$$\chi_I^{(3)} = \frac{4n_0\varepsilon_0c}{3}(n_0n_2 + k_0k_2) \quad (2.20)$$

Experimentalmente en esta tesis se ha realizado optimización en generación de segundo armónico (*SHG*) ( $\chi^{(2)}$ ), efecto Kerr óptico ( $\chi^{(3)}$ ) y absorción a dos fotones ( $\chi^{(3)}$ ). También se han realizado experimentos de optimización sobre procesos de alineación molecular. El intenso campo eléctrico del pulso es capaz de alinear las moléculas de nitrógeno ( $N_2$ ) del aire con el plano de polarización del láser, lo que da lugar a efectos de birrefringencia inducida. Los procesos de *SHG* y alineación molecular se describirán con detalle en sus respectivos apartados de resultados experimentales.

## 2.4. Optimización

La optimización puede ser definida cómo el proceso de determinar la *mejor* solución para un determinado problema y puede ser aplicada a todo tipo de situaciones y problemas. Se puede optimizar un problema matemático o de índole aplicada cómo, el establecimiento de rutas comerciales, el diseño de reactores químicos, logística, enrutamiento en redes de comunicación,...

En general podemos definir un problema de optimización cómo encontrar el valor óptimo (deseado) de  $f(\mathbf{x})$ , donde  $\mathbf{x} \in S^D$  es un vector de  $D$  parámetros  $\mathbf{x} = \{x_1, x_2, \dots, x_D\}$ . Denominaremos a estos  $D$  parámetros cómo espacio de control y al conjunto de valores de  $f(\mathbf{x})$  asociado a cada uno de los posibles vectores  $\mathbf{x}$ , espacio de soluciones.

En nuestro problema el espacio de control está constituido por la fase espectral,  $\phi(\omega)$ , del pulso laser. Experimentalmente<sup>18</sup> está compuesto por 320 variables, cada una de ellas controlables en el rango  $[0, 2\pi)$ . Hemos de encontrar  $\phi(\omega)$  para optimizar nuestro observable, la generación de un efecto óptico no-lineal producido por el campo eléctrico  $E(t) = \mathcal{F}^{-1}[\tilde{E}(\omega)]$  sobre un medio.

Disponemos de un espacio de control de una alta dimensionalidad, con un observable no-lineal. Debido a que no tenemos conocimiento suficiente sobre el sistema (mecanismos de interacción implicados, caracterización del pulso, perturbaciones en el camino óptico...) para poder hacer un diseño de  $E(t)$  *a priori*, hemos de utilizar una configuración en bucle cerrado cómo la que muestra la Figura 1.1 para encontrar la conformación temporal. Esto permite que la observación del efecto producido por

<sup>18</sup>Debido a las características del sintetizador de pulsos, capítulo 5.2

$E(t)$  sea utilizada por un algoritmo de optimización para poder encontrar la fase  $\phi(\omega)$  adecuada.

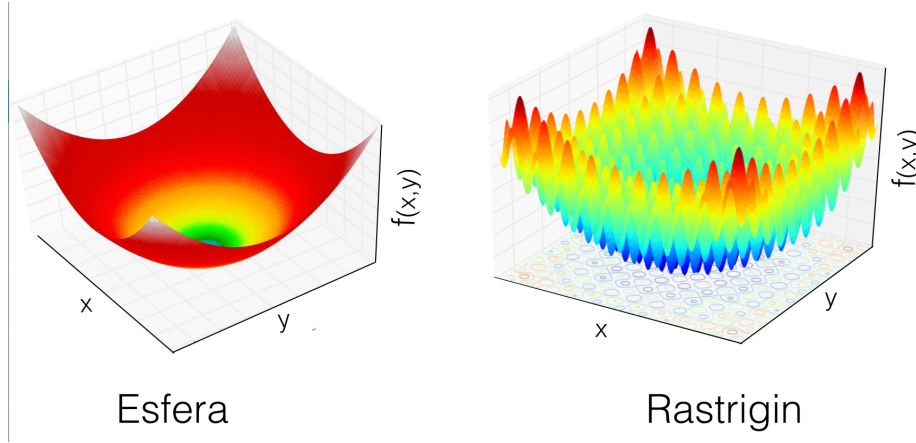


Figura 2.3: Ejemplos de espacios de soluciones mono y multimodal. En el caso de la esfera sólo disponemos de un mínimo global. La función *Rastrigin* posee múltiples mínimos de diferente valor, es multimodal.

La topología del espacio de soluciones y el ruido al que está sometido el experimento determinarán la eficiencia de la aplicación de un algoritmo. Para ilustrar el concepto de topología del espacio de soluciones en la Figura 2.3 tenemos dos espacios de soluciones continuos bidimensionales que muestran diferente complejidad. Imaginemos que tenemos que encontrar el mínimo de cada uno de estos espacios. Es claro que para el caso de la esfera nos bastará con seguir su gradiente. Este espacio sólo posee un mínimo claramente localizado, es un ejemplo de una función *unimodal*, solo existe una cuenca de atracción en la que reside el mínimo global. En contraposición nos podemos encontrar con un espacio *multimodal*, cómo el correspondiente a la función *Rastrigin*, vemos múltiples mínimos/máximos que no poseen el mismo valor, constituyen soluciones locales. En la búsqueda del mínimo global los mínimos locales suponen trampas en la que los algoritmos de optimización pueden quedar atrapados. Hacen falta métodos mas complejos para encontrar el óptimo en este tipo de espacio de soluciones.

Cada espacio de soluciones tiene un algoritmo que lo recorre mejor. cómo nos dice el "*Non Free Lunch Theorem*" [40], no existen algoritmos de aplicabilidad universal, de hecho, en promedio frente a los diferentes tipos de espacios, todos los algoritmos se comportan con igual eficiencia. La elección del algoritmo de optimización es, por lo tanto, fundamental para minimizar el número de evaluaciones necesarias en la optimización. Mantener baja la ventana de recursos consumidos y obtener un resultado satisfactorio son los dos aspectos mas importante de esta elección.

Básicamente, los algoritmos de optimización se diferencian en cómo muestrean el espacio de soluciones y en cómo toman las decisiones para realizar los siguientes muestreos. Aparece aquí el concepto de distancia de salto, normalmente denotado  $\sigma$ , que determina la distancia a la que se evalúan las soluciones en el espacio. El problema de determinar el tamaño de  $\sigma$  es fundamental. Por ejemplo, un tamaño de paso reducido puede hacer que no podamos escapar de una cuenca perteneciente a un mínimo local, uno demasiado grande puede hacer que no podamos encontrar un mínimo muy localizado.

Existen múltiples criterios posibles para catalogar los diferentes algoritmos de optimización, existiendo un gran solapamiento de clases ante cualquier clasificación que se establezca. Una primera división general la podemos establecer entre métodos basados en la derivada (derivativos) y no basados en la derivada (no-derivativos).

- **Derivativos.** Estos métodos utilizan información del gradiente que ofrece el espacio de soluciones para establecer la dirección y distancia de la búsqueda que realizan. Suelen ser veloces en la obtención de soluciones. Ejemplos de estos métodos los tenemos en la búsqueda de Newton-Raphson o el descenso de gradiente.
- **No-Derivativos.** Se utilizan cuando el espacio de soluciones no es derivable o no es continuo. Suelen presentar una marcada componente estocástica y pueden estar basados en conceptos como la evolución (algoritmos evolutivos) o la termodinámica (*simulated annealing*)

Dentro de los derivativos y los no derivativos podemos hacer una distinción en función del número de soluciones que utilizan a la vez en la exploración. De esta forma podemos distinguir entre algoritmos mono-punto y multi-punto.

- **Mono-punto.** Exploran el espacio de soluciones mediante la evolución controlada de un único punto que se ira desplazando hasta alcanzar el mínimo de la función de coste.
- **Multi-punto.** Utilizan múltiples puntos para explorar el espacio de soluciones. Los algoritmos evolutivos son uno de sus ejemplos mas conocidos, en los que los puntos de prueba se agrupan en poblaciones, que evolucionan generación tras generación, hasta encontrar el óptimo.

También resulta útil clasificarlos en función de cómo generan sus soluciones de prueba a la hora de explorar el espacio. Atendiendo a este aspecto en la Figura 2.4 vemos su clasificación en dos grandes grupos, aleatorios y deterministas

Los algoritmos deterministas podemos definirlos como aquellos algoritmos en los que conociendo sus entradas tenemos perfectamente definida su salida, ante el mismo

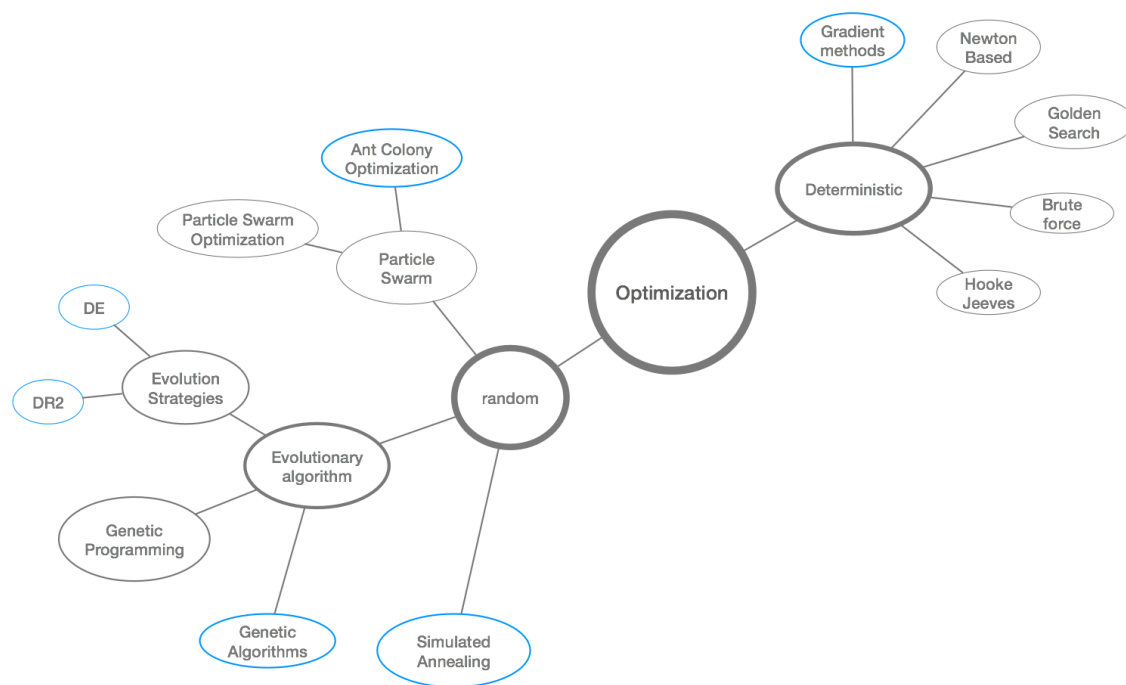


Figura 2.4: Clasificación de algoritmos de optimización. En azul los principales algoritmos que podemos encontrar en la literatura aplicados a nuestro problema.

problema y punto de partida nos ofrece siempre la misma respuesta. Su secuencia de pasos de optimización no se encuentra condicionada por factores aleatorios. Son mas eficientes que los algoritmos probabilísticos, pero esta aproximación es muy restrictiva y el número de problemas para los que existe un algoritmo determinista eficaz es limitado.

Los algoritmos con base aleatoria, o algoritmos probabilísticos, que son aquellos en, en mayor o menor grado, tienen dependencia del azar en su exploración y/o toma de decisiones. Ante el mismo problema nos ofrece siempre una respuesta diferente, por lo que es posible que hay que tener que recurrir a la estadística para poder validar sus resultados.

Atendiendo a la aleatoriedad podemos encontrarnos:

#### ■ Deterministas

Newton-Raphson. Utilizado para encontrar raíces de una función, no muy eficiente si dicha función no es cuadrática.

Métodos de gradiente (*Gradient Descent*). Se establece una dirección y distancia de búsqueda a partir de la evaluación local de la pendiente que ofrece la solución.

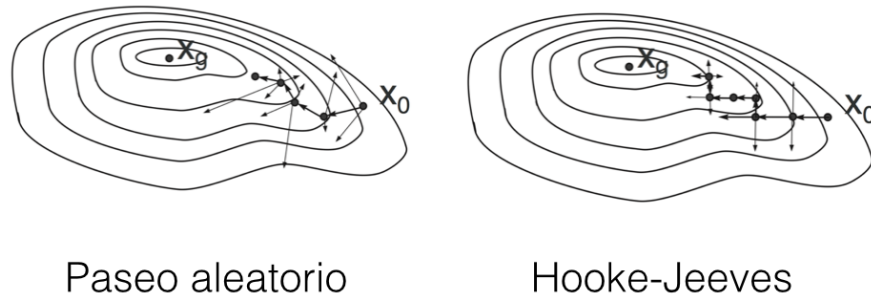


Figura 2.5: Exploración del espacio de soluciones de una función unimodal mediante los métodos monopunto de *paseo aleatorio* y *Hooke-Jeeves*

Fuerza Bruta (*Brute Force search*). Sigue un patrón establecido de búsqueda a lo largo de todo espacio, con un tamaño de paso,  $\sigma$  determinado. Son poco eficientes y requieren un gran número de muestras para encontrar la solución.

Paseo aleatorio (*Random Walk*). Explora mediante la generación de puntos aleatorios basados en adición de una perturbación, normalmente con distribución gaussiana, al punto de exploración, con adopción del nuevo punto probado si este ofrece mejor resultado (fig2.5).

Búsqueda Áurea (*Golden section search*). Se utiliza para encontrar extremos (mínimo/máximo) en funciones unimodales, se basa en restringir en sucesivas iteraciones el rango de valores en el que el extremo existe.

Hooke-Jeeves (*Pattern Search*). Explora cada eje de coordenadas, en cada punto, y con un paso determinado, se exploran todas las  $D$  dimensiones en direcciones positivas y negativas. Si el mejor de los puntos probados es mejor que el base se acepta y se realiza una exploración en la misma dirección que generó la mejora, si no lo es, se disminuye el tamaño de paso(fig2.5).

Nelder-Mead (*Simplex*) Se basa en la evolución de un polígono<sup>19</sup> de  $n + 1$  vértices denominado simplex, siendo  $n$  el número de dimensiones del espacio. El simplex evoluciona mediante reflexiones y expansiones, dependiendo de la evaluación que proporcionan sus vértices, a lo largo del espacio de soluciones.

#### ■ Aleatorios

*Simulated Annealing*. Inspirado en la termodinámica, imita el comportamiento de los átomos en el enfriamiento lento de una sustancia, en el que buscan alcanzar una configuración de mínima energía. Se explora el espacio de forma

<sup>19</sup>Estrictamente hablando se trata de un politopo

aleatoria, pero se permite la evolución hacia peores valores de evaluación con una probabilidad que dependerá de la "temperatura", decreciente con el número de evaluaciones del algoritmo.

Optimización de enjambre de partículas (*Particle Swarm Optimization*) Es un conjunto de técnicas de optimización basadas en el comportamiento de partículas (soluciones) que imitan el comportamiento de un enjambre, cómo bancos de peces, abejas, hormigas...

Algoritmos evolutivos. Inspirados en la evolución Darwiniana, los algoritmos evolutivos (*AE*) hacen pocas o ninguna asunción acerca del problema que tratan de resolver. Son capaces de encontrar soluciones en espacios de soluciones muy grandes y topológicamente adversos. Son la solución mas extendida en el problema que nos ocupa.

Estas clasificaciones no son exclusivas, por ejemplo, a un algoritmo determinista se le puede incorporar cierto grado de aleatoriedad. De esta forma se puede mejorar su capacidad de exploración. Igualmente, un algoritmo monopunto se puede utilizar con aproximación multipunto, lanzando varias soluciones que evolucionen de forma paralela.

Los *AEs* son estrategias de búsqueda bio-inspiradas en los mecanismos de adaptación y evolución. Imitan la evolución, un mecanismo que se ha mostrado tremendamente efectivo para resolver el problema de sobrevivir en un entorno fuertemente no-lineal y no predecible cómo es nuestro planeta. En un *AE* el problema se trata cómo un entorno biológico artificial, las soluciones se agrupan en poblaciones que evolucionan a lo largo de generaciones en la búsqueda del óptimo. Cada población es un conjunto de soluciones posibles, a las que se asigna un valor dependiendo del resultado de su evaluación. Las soluciones, siguiendo determinadas reglas, se reproducen y generan una descendencia que constituye (o forma parte) la siguiente generación. Generación tras generación la población evoluciona hasta lograr la convergencia al óptimo. Por su carácter probabilístico la solución ofrecida será diferente en cada caso.

Dentro de los *AEs* podemos distinguir dos grandes grupos, las estrategias evolutivas (*EE*) y los algoritmos genéticos (*AG*); existiendo entre ellos dos grandes diferencias. La primera es que los (*AG*) codifican la solución mediante tramas de bits, imitando el comportamiento del genoma, mientras que en las *EEs* se trabaja con parámetros en coordenadas reales (aunque podemos encontrar *AG* que trabajan con parámetros reales). La segunda gran diferencia es su forma de generar la descendencia a partir de las poblaciones. En los *AG* la evolución de la población es producida solamente por los mecanismos de mutación y cruce sobre los genes (bits) o parámetros que componen sus soluciones. En las *EE* se utiliza también información acerca del espacio de soluciones, que se obtiene a través de la evaluación de los individuos, para generar un esquema autoadaptativo de exploración.

Cómo se ha mostrado en la gran mayoría de las soluciones de optimización sobre fenómenos ópticos de interacción no-lineal mediante conformación temporal de pulsos está basada en algoritmos probabilísticos. Especialmente extendido está uso de los *AE*, aunque también podemos encontrar aplicaciones en las que se prueban otro tipo de algoritmos cómo los de *ant colony* [41] o *simulated annealing* [21].

La paralelización en el proceso de optimización es una ventaja de los *AEs*. Todos los individuos de la población pueden ser evaluados de forma independiente y paralela. En el caso de la experimentación computacional la ventaja es clara, pero en nuestro caso (optimización real en laboratorio) esta ventaja directamente desaparece: experimentalmente sólo podemos realizar una evaluación de solución sobre el experimento cada vez. Por fuerza nuestro proceso de evaluación ha de ser en serie.

Aunque su aplicación y capacidad de encontrar soluciones en el problema que nos ocupa esta fuera de duda, los *AEs* tienen un importante inconveniente derivado de los mecanismos estocásticos y poblacionales: requieren un número elevado de evaluaciones para converger. Además pueden sufrir una importante pérdida de velocidad de convergencia al aumentar el número de variables a optimizar. Es la denominada explosión combinatoria. El incremento de variables en el espacio de control, hace que los espacios de soluciones asociados incrementen su tamaño de forma exponencial. Esto puede repercutir de forma notable en el proceso de búsqueda. Uno de nuestros objetivos es, precisamente, intentar mantener bajo el número de ensayos requeridos en la optimización.

Dado que los *AEs* son ampliamente utilizados en los problemas de optimización que nos afectan, en esta tesis hemos utilizado dos de ellos, de los que se encontrara un descripción detallada en el Capítulo 4.

- *Algoritmos Genéticos*. Se han incluido por ser uno de los algoritmos mas extendidos en este tipo de problemas.
- *Differential Evolution*. Hemos empleado este algoritmo alternativo a las estrategias habitualmente encontradas en la literatura. Se ha elegido por presentar buenas propiedades de convergencia en un gran número de problemas con alta dimensionalidad y de tipo no-lineal [31].

A lo largo del desarrollo de esta tesis nos hemos encontrado con determinados aspectos topológicos del espacio de soluciones<sup>20</sup> y del comportamiento del espacio de control que nos ha llevado a desarrollar un algoritmo novedoso. Lo denominamos *Multiple One-Dimensional Search (MODS)*, Se verá con detalle en el capítulo 4. .

Podríamos clasificarlo cómo:

---

<sup>20</sup>Conocer la topología del espacio de soluciones es una gran ayuda a la hora de realizar una optimización

- Determinista: siempre sigue los mismos pasos y siempre nos ofrece la misma solución ante las mismas condiciones, haciendo una exploración sistemática del espacio de soluciones.
- Mono-punto: Usamos una sola solución que perturbamos para explorar el espacio
- Marginal: Optimiza los parámetros del espacio de control de forma individual
- Utiliza conceptos de exploración similares a Hooke-Jeeves y de restricción de espacio similar a la búsqueda áurea.

Este algoritmo presenta un excelente balance entre la bondad de las soluciones obtenidas y el número de evaluaciones requeridas para lograr la convergencia, minimizando así la ventana de recursos consumidos, y presentando una alternativa realista ante optimizaciones donde el número de evaluaciones a realizar se encuentra limitado por alguna circunstancia.



## Capítulo 3

### Soporte Experimental

### 3.1. Introducción

En este capítulo se describirán los elementos que hacen posible la realización de los experimentos, el esquema general del sistema experimental utilizado se muestra en la Figura 3.1. En él podemos ver cómo el pulso generado por el sistema láser se conforma temporalmente por el sintetizador de pulsos. El efecto físico generado por el pulso conformado es observado por el algoritmo de optimización, que ejerce las acciones sobre la síntesis de pulsos para guiar el efecto hacia el objetivo que se le ha asignado. Es posible extraer el pulso para su caracterización una vez se ha conformado, con el fin de obtener información sobre los mecanismos físicos del proceso.

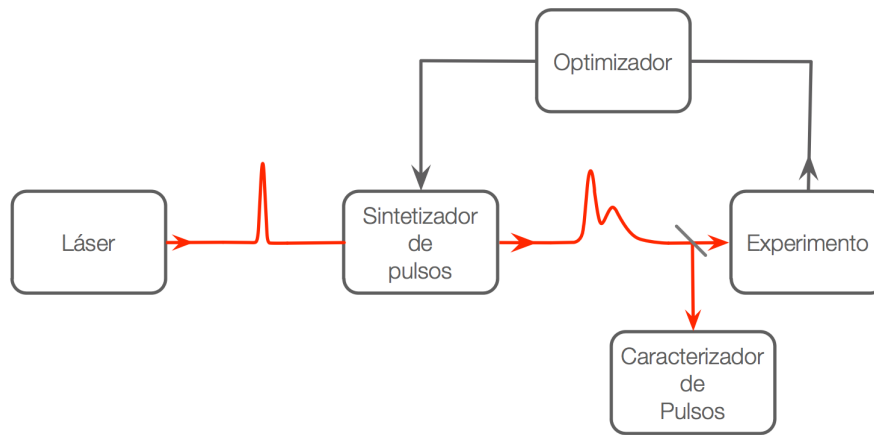


Figura 3.1: Esquema relacional básico de los elementos que conforman el sistema experimental. El sistema láser proporciona los pulsos que serán modificados por el sintetizador de pulsos. Podemos observarlos gracias al caracterizador de pulsos (*FROG*). Una vez interaccionan en el experimento el optimizador genera las acciones necesarias sobre el sintetizador en base a su observación.

Se describirá el funcionamiento y principales características de los siguientes elementos.

- **Sistema laser.** Proporciona los pulsos ultracortos de 100 fs.
- **Sintetizador de pulsos.** Permite sintetizar formas de onda de  $E(t)$  a través de la manipulación de la fase espectral en el dominio de la frecuencia. En él se encuentra el *SLM*, que constituye el espacio de control de los algoritmos de optimización.
- **Caracterizador de pulsos** Permite analizar el pulso resultante resolviendo su amplitud y fase tanto en frecuencia como en tiempo.

Los dos elementos restantes, el algoritmo y el observable necesitan de este soporte. Los algoritmos de optimización utilizados, así como el método de manipulación de la fase, se verán en el capítulo 4. Los observables utilizados se describirán en cada una de las optimizaciones experimentales que se analizan en el capítulo 5.

## 3.2. Sistema láser

Nuestra fuente de luz laser es un amplificador regenerativo de Ti:Zafiro (*Spitfire Pro XP*), que genera pulsos amplificados de 100 fs centrados en 799 nm (9.5 nm *FHWM*) de 1 mJ de energía con una frecuencia de repetición de hasta 1 kHz, lo que equivale a una potencia de pico del orden de 10 GW por pulso.

Este equipo es comercial de la marca *Spectra-Physics* y su configuración general se muestra en la Figura 3.2. En resumen, el sistema *bombeo-oscilador* genera un haz láser pulsado que es amplificado en el amplificador regenerativo (*Spitfire*), bombeado 1 kHz.

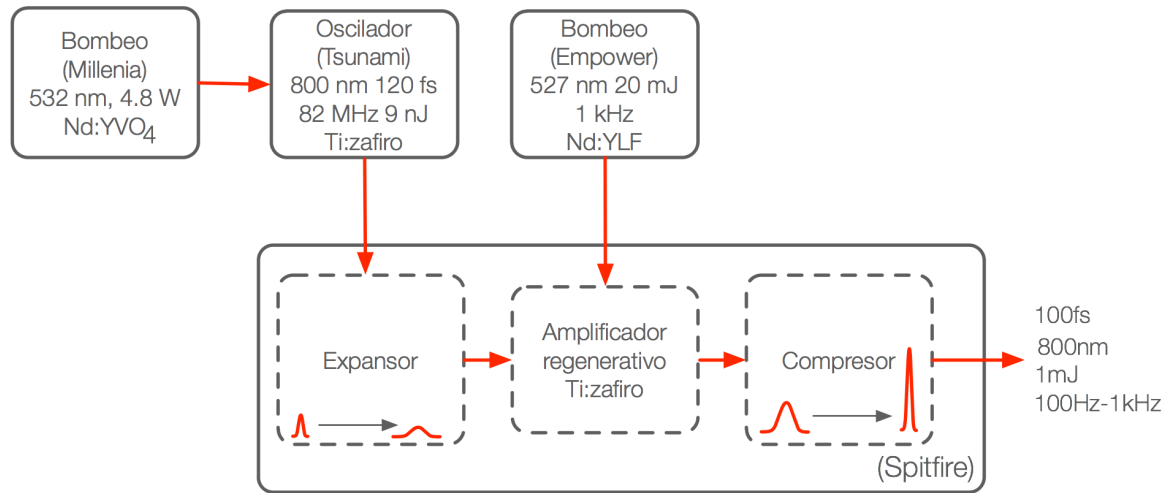


Figura 3.2: Esquema general del sistema de generación y amplificación de pulsos láser de fs empleado.

En el amplificador regenerativo recibe los pulsos láser semilla generados por el oscilador (*Tsunami*) de estado sólido de Ti:Zafiro anclado en modos. Este genera pulsos de 120 fs con una frecuencia de repetición de 82 MHz, su energía de bombeo es proporcionada por un láser continuo de estado sólido (*Millenia*) de 4.8W centrado en 532nm. El bombeo de energía para la amplificación proviene de un láser pulsado por conmutación de  $Q^{21}$  con un medio activo de Nd:YLF bombeado por diodos de

<sup>21</sup> *Q-switched*

AlGaAs (*Empower*). Este genera pulsos a 1053 nm, doblados en frecuencia dentro de la cavidad mediante un cristal de triborato de Litio (LBO) generando pulsos de 20 mJ centrados en 527 nm a 1 kHz.

En la Figura 3.3<sup>22</sup> se muestra el camino óptico que siguen los pulsos semilla procedentes del oscilador dentro del amplificador regenerativo. Después de atravesar el aislador de Faraday<sup>23</sup> (*F1*) los pulsos son expandidos temporalmente por medio de un sistema de espejo-red de difracción de varios pasos (*Pulse Stretcher*). Mediante la expansión temporal se disminuye la potencia de pico de los pulsos, de forma que pueden ser introducidos en la etapa de regeneración y amplificados. Mediante un par de células de Pockels el pulso hace múltiples pasadas por el cristal de Ti:Zafiro. La célula pockels de inyección permite sincronizar las frecuencias de repetición del oscilador y el amplificador para generar pulsos amplificados con una frecuencia de repetición de 1 kHz. Esta es la etapa de amplificación en la que se incrementa su energía en cada paso hasta un factor  $\approx 10^6$ . Después de alcanzar el nivel deseado de amplificación, los pulsos se extraen mediante la célula pockels de salida y alcanzan el compresor (*Pulse Compressor*), donde son recomprimido para conformar el pulso de salida. Este tiene 100 fs duración, con un ancho de banda de 9,5nm *FWHM* centrado a 799nm. Estos son los pulsos láser con los que trabajaremos.

La etapa de compresión se encuentra motorizada, permitiéndonos cambiar la cantidad de trino<sup>24</sup> del pulso y, por lo tanto, su duración. Este mecanismo se utilizará en la experimentación para expandir temporalmente los pulsos y comprobar la capacidad de recompresión temporal de los algoritmos.

Las oscilaciones en los niveles de bombeo tanto del oscilador como del amplificador, así como fluctuaciones en el sincronismo entre los pulsos del oscilador (82 MHz) y el tren de pulsos de bombeo (1 kHz), generan fluctuaciones de energía en el pulso amplificado, si bien el fabricante especifica que estas son menores al 1% *RMS*, en la práctica nos encontramos con que son considerablemente mayores (ver Figura 5.2, página 88).

Disponemos también de una fuente de incertidumbre temporal en los pulsos que proviene del hecho de tener que realizar la amplificación con el pulso expandido temporalmente [42]. Durante las etapas de expansión y compresión los pulsos láser se encuentran dispersados espacialmente en el dominio de la frecuencia<sup>25</sup> [43], siendo extremadamente sensibles a las variaciones existentes de densidad y temperatura del medio (aire) por el que viajan. Estas variaciones provienen de corrientes térmicas producidas por los elementos que generan calor dentro del amplificador (células de

<sup>22</sup>Figura tomada del manual del amplificador *Spitfire-pro* de *Spectra-Physics*

<sup>23</sup>Rotador de polarización basado en efecto magneto-óptico que impide el retorno de los pulsos (p.e. retroreflexiones), que podrían dañar el oscilador

<sup>24</sup>Fase cuadrática, genera una variación lineal de frecuencias en el tiempo

<sup>25</sup>Veremos este aspecto en mas detalle al hablar del sintetizador de pulsos en el apartado siguiente

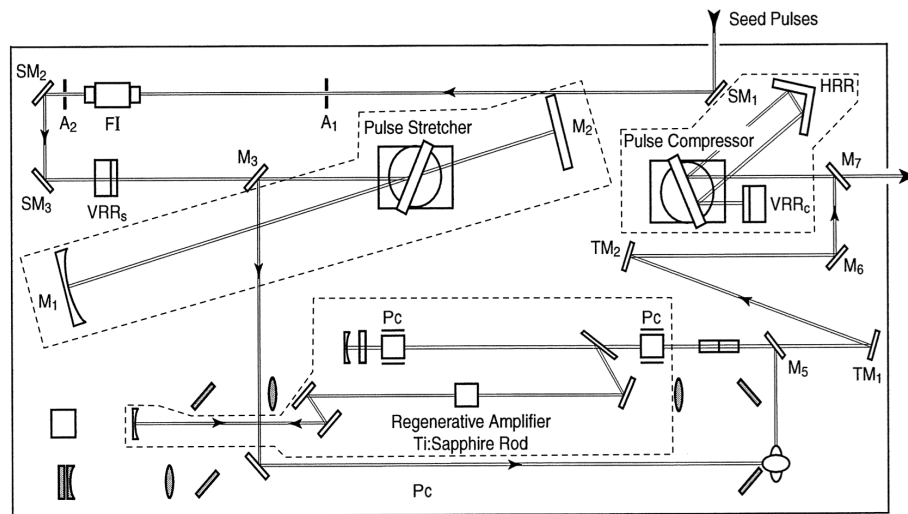


Figura 3.3: Esquema del camino óptico del haz procedente del oscilador (*Seed Pulses*) en la etapa de amplificación. El pulso es expandido temporalmente (*Pulse Stretcher*) antes de ser amplificado en la barra de Ti:Zafiro (medio de ganancia), posteriormente es recomprimado (*Pulse Compressor*) hasta alcanzar los 100 fs *FWHM*.

Pockels y bombeo de la barra de Ti:Zafiro principalmente), y de variaciones de presión producidas en el exterior, que se introducen en la cavidad del amplificador a través de la apertura de salida. La consecuencia es la aparición de cambios de fase espectrales y, por lo tanto, cambios en la conformación temporal del pulso. En procesos como la generación de segundo armónico o la absorción a dos fotones, donde el proceso depende de la potencia de pico, esto será de especial relevancia<sup>26</sup>.

En definitiva, disponemos de un sistema de generación de pulsos láser ultracortos de 100 fs centrado en 799 nm, con 1mJ de energía y 1 kHz de frecuencia de repetición, pero cuyos pulsos poseen variaciones intrínsecas tanto de amplitud como temporales que van a afectar a nuestra observación de los fenómenos a optimizar, introduciendo incertidumbre en la señal de realimentación para los algoritmos. Mas adelante se verá cómo ello se refleja en el laboratorio en el capítulo sobre restricciones experimentales, 5.1.3, página 96.

<sup>26</sup>Hemos trabajado experimentalmente con estos fenómenos, capítulo 5.3.3, página 122

### 3.3. Sintetizador de pulsos

Debido a las limitaciones en velocidad de los dispositivos electro-ópticos, en el rango de los femtosegundos han de usarse técnicas indirectas para la síntesis de formas temporales ( $E(t)$ ). Nuestro sistema utiliza la técnica de filtrado de Fourier en el espacio de frecuencias. Para realizar la modulación temporal del pulso las componentes de frecuencia son dispersadas espacialmente, de forma que podemos interactuar sobre ellas. En el sintetizador de pulsos modificamos la fase espectral mediante un modulador espacial de luz programable controlado por ordenador. Una vez restituído el paquete de luz al dominio del tiempo su estructura temporal obedecerá a las modificaciones de fase que realicemos.

En este capítulo veremos cómo se realizan las traslaciones tiempo-frecuencia mediante una transformada de Fourier óptica y los aspectos mas relevantes del modulador de fase, así cómo sus problemas asociados.

#### 3.3.1. Configuración del sintetizador de pulsos

De las múltiples configuraciones existentes para la generación de pulsos conformados temporalmente [44], se ha utilizado síntesis temporal de pulsos mediante manipulación de la fase espectral o *Phase Only Pulse Shaping*. Aunque la modulación de amplitud y fase son necesarias para una conformación temporal exacta, el uso de la fase espectral permite, en la práctica, alcanzar resultados muy satisfactorios [45] [46] [47]. Presenta, asimismo, la ventaja de conservar la energía del pulso de entrada, facilitando de esta forma la interpretación de la relación entre los fenómenos inducidos y la estructura temporal del pulso.

Para poder trabajar con el pulso en el dominio de la frecuencia se utiliza un sistema  $4f$ <sup>27</sup> con dispersión nula<sup>28</sup> [48] [49]. El esquema básico es el mostrado en la Figura 3.4. Por simplicidad visual se muestra con lentes aunque en la configuración experimental se utilizan espejos cilíndricos, tal y cómo se muestra en la Figura 3.5. La utilización de espejos cilíndricos permite evitar problemas de dispersión y aberración cromática que presentan las lentes, pero presenta el inconveniente de tener que trabajar fuera de eje óptico del sistema.

Básicamente, el sintetizador realiza una transformada de Fourier óptica en las primeras  $2f$  y una transformada inversa en las últimas  $2f$ . El funcionamiento es cómo sigue. Las componentes de frecuencia que conforman el pulso ultracorto son dispersadas mediante la red de difracción de entrada, situada en el plano focal primera lente. Son enfocadas en el Plano de Fourier del sistema, en el que se forma la imagen de las

<sup>27</sup>Por  $f$  entendemos la distancia focal

<sup>28</sup>Básicamente en ausencia de mascara de fases la entrada y salida del sistema debe ser la misma. Así pues, tanto las lentes cómo las redes de difracción han de estar libres de dispersión.

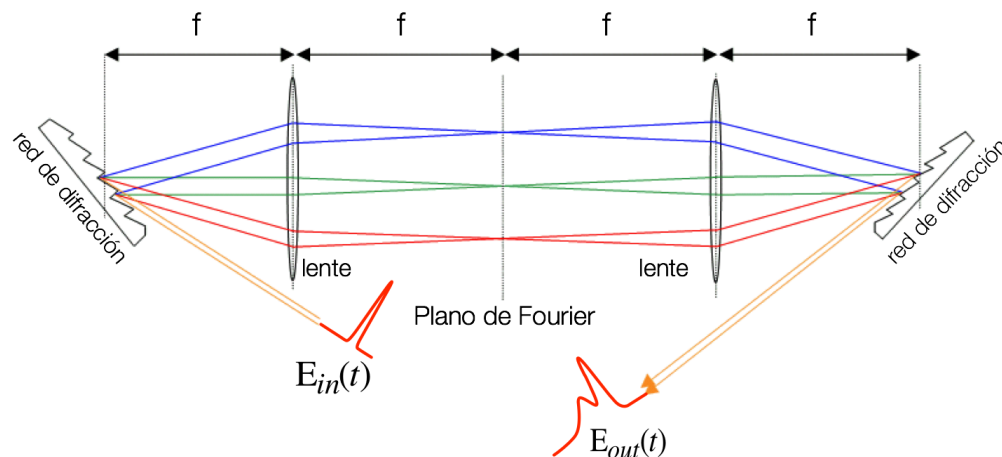


Figura 3.4: Esquema simplificado de un sintetizador temporal con configuración de dispersión nula utilizando redes de difracción y lentes. En el centro geométrico del sistema está el plano de Fourier, donde las frecuencias espectrales se encuentran espacialmente separadas. Este es el punto de inserción del modulador de fase.

componentes espectrales del pulso, encontrándose espacialmente separadas y enfocadas a lo largo de una dimensión. La segunda lente y red de difracción se encargan de la recombinación de todas las componentes espectrales en un haz colimado: el pulso es devuelto al dominio temporal.

Durante el desarrollo de esta tesis se han implementado dos sintetizadores de pulsos diferentes, ambos, por motivos de compatibilidad con otros experimentos, diseñados para ser utilizado a la salida del amplificador regenerativo<sup>29</sup>. Este hecho impone importantes limitaciones, como son el diámetro de haz ( $\approx 8$  mm a  $1/e^2$ ) y su energía (1 mJ).

Para la implementación del primer sintetizador de pulsos (*sintetizador 1*) se utilizó la configuración descrita por Präkelt [49]. Se trata de un *sintetizador compacto* basado en redes de difracción fuertemente dispersivas (2000 líneas/mm) y lentes de  $\approx 25$  cm de focal. Sobre la red de entrada se utilizó un haz comprimido un factor dos, fuertemente atenuado para evitar el dañado del *SLM* y otros elementos ópticos, aun así, el diámetro conseguido no puede ser considerado como puntual en las redes de difracción. Este hecho, en combinación con los ángulos de entrada y salida en las redes (cuadro 3.3.1), el rango de Rayleigh de los espejos cilíndricos empleados (sólo 2 mm) y los ángulos necesarios entre elementos ópticos para el montaje compacto, generaban problemas irresolubles de astigmatismo, y el sistema mostraba un perfil

<sup>29</sup>El sintetizador es utilizado para conformar el *Probe* en la realización de experimentos Pump-Probe en microscopía con resolución de femtosegundos, dichos pulsos requieren una considerable cantidad de energía

	<i>sintetizador 1</i> , f:258mm	<i>sintetizador 2</i> , f:1000mm
Longitud de onda	799 nm	799 nm
Red de difracción	2000 líneas/mm	1400 líneas/mm
Periodo	$5 \cdot 10^{-7}$ mm	$7.14 \cdot 10^{-7}$ mm
Ángulo de Littrow	53,13°	34,00°
Ángulo incidente	53,12°	53,12°
Ángulo difractado	53,14°	53,14°
Diámetro de haz ( $1/e^2$ )	8 mm	8 mm
Focal de la lente cilíndrica	258 mm	1000 mm
Rango de Rayleigh	2.11 mm	40.49 mm
Ventana temporal	29 ps	41 ps
Resolución espectral por pixel	0.20 nm	0.14 nm

Cuadro 3.1: Características principales de los dos sintetizadores utilizados.

espacial de salida no del todo satisfactorio<sup>30</sup> y una dispersión residual que ensanchaba el pulso de salida a unos 200 fs *FHWM*. A pesar de estos problemas, los resultados de los experimentos de optimización en compresión de pulsos fueron extremadamente satisfactorios.

No obstante se optó por desarrollar un segundo sintetizador de pulsos de alta energía (*sintetizador 2*) basándonos en los esquemas desarrollados por Monmayrant et al. [37]. Este sintetizador fue diseñado *ex profeso* para cumplir con las necesidades de alta energía y diámetro de haz de nuestro sistema de amplificación, con ópticas de distancia focal larga (1 m) y redes de difracción menos dispersivas. Ello ha permitido disponer de un verdadero sistema 4f con dispersión nula con el que se ha realizado la mayor parte del trabajo de la tesis. Debe destacarse que es, hasta la fecha, el único sistema reportado en la literatura [50] capaz de emplear pulso del orden de 100 fs con energías en el rango de 1 mJ. En el cuadro 3.3.1 se muestran las principales características mas importantes de ambos sintetizadores en relación a los parámetros empleados en la referencia [37], así como el rango de Rayleigh de las ópticas empleadas y los ángulos de incidencia y difracción empleados que condicionan el control de los problemas de astigmatismo del sistema.

Los resultados experimentales mostrados en el Capítulo 5 corresponden, excepto en las ocasiones en las que se especifica lo contrario, a resultados obtenidos con el *sintetizador 2*.

El modulador espacial de luz (*SLM*<sup>31</sup>) se sitúa en el plano de Fourier del sistema 4f del sintetizador. Es un conjunto lineal de 320 pixeles, cada uno de ellos con capacidad de modificar su índice de refracción extraordinario de forma independiente. Así las

<sup>30</sup>Principalmente trino espacial, la distribución de frecuencias en el haz no era uniforme

<sup>31</sup>Spatial Light Modulator, se verá en detalle en la sección 3.3.2, pág. 36



longitudes de onda que atraviesan cada pixel sufrirán un desfase óptico diferente. Ello permite modificar la posición temporal relativa de las componentes espectrales, es decir, modificar su fase relativa.

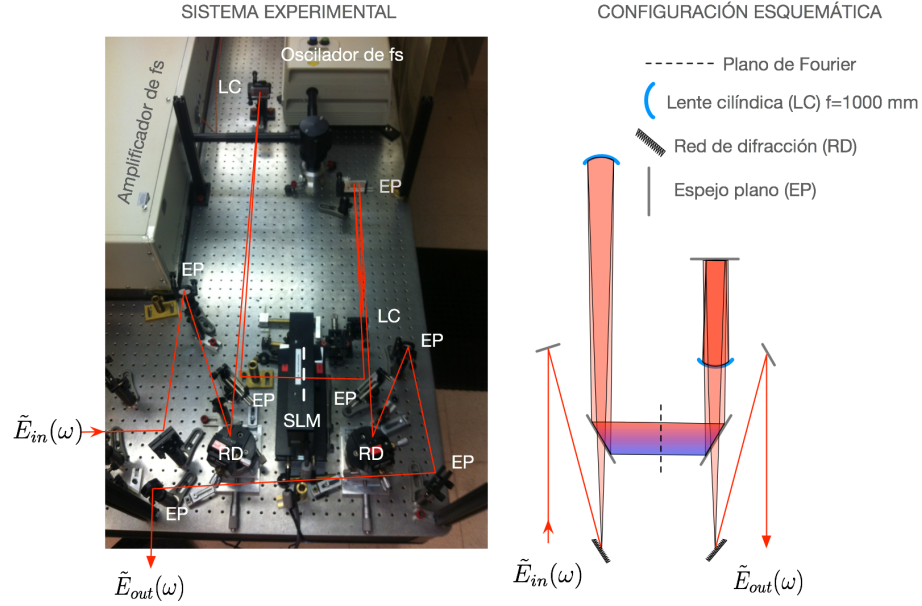


Figura 3.5: Esquema y configuración real del sintetizador de pulsos implementado. Se utilizan lentes de 1 m de focal. El recorrido interior del haz es de 4 metros ( $4f$ ). En el montaje experimental el brazo de salida se encuentra plegado por limitaciones de espacio. (Configuración correspondiente al sintetizador 2, cuadro 3.3.1)

La respuesta en frecuencia del sintetizador puede expresarse cómo:

$$\tilde{E}_{out}(w) = \tilde{E}_{in}(w)H(w) \quad (3.1)$$

El pulso  $\tilde{E}_{out}(\omega)$  es el producto del pulso de entrada por la función de transferencia espectral del sistema  $H(\omega)$ . Idealmente, un sistema  $4f$  de dispersión nula presentara  $|H(\omega) = 1|$ , con lo que la energía del pulso de salida es igual a la del pulso de entrada. Mediante el *SLM*, situado sobre el plano de Fourier, podemos modificar la fase que introduce la función de transferencia,  $\phi_{SLM}$ , sobre el espectro, con lo que nuestro pulso de salida será

$$\tilde{E}_{out}(\omega) = \tilde{E}_{in}(\omega)H(\omega) = |A_{in}(\omega)| e^{j\phi_{in}} 1 e^{j\phi_{SLM}} = |A_{in}(\omega)| e^{j\phi_{in} + j\phi_{SLM}} \quad (3.2)$$

Siendo  $|A(\omega)_{in}|$  la envolvente espectral del pulso de entrada y  $\phi_{in}$  su fase. El pulso de salida es obtenido mediante la aplicación de la transformada inversa de Fourier

óptica.

$$E_{out}(t) = \mathcal{F}^{-1}(|A_{in}(\omega)| e^{j\phi_{in} + j\phi_{SLM}}) \quad (3.3)$$

Por supuesto, esto es en condiciones ideales, en el sistema experimental real se presenta, sobre todo por efectos debidos al comportamiento y estructura de la mascara de fases (se verá en el siguiente apartado), aparecerá una cierta modulación de amplitud.

### 3.3.2. El modulador espacial de luz, *SLM*

Una vez disponemos del dispositivo óptico que nos permite transportar nuestro pulso temporal al dominio de la frecuencia podemos manipular sus componentes espectrales, ahora especialmente separadas. Para realizar la manipulación espectral el *SLM* opera sobre el plano de Fourier del sistema 4f. Podríamos realizar modificación de fase, amplitud y/o polarización [51], cada una de estas operaciones requiere su propia configuración y/o dispositivo de manipulación diferentes, cómo moduladores acusto-ópticos [15], mascarar holográficas, espejos deformables,... Nuestro sistema experimental utiliza un modulador espacial de luz de cristal líquido programable SLM-S320 (*Jenoptik*) que nos permite hacer una modificación dinámica de la fase espectral<sup>32</sup>.

Cambiar la fase espectral consiste literalmente en modificar la posición temporal relativa de las componentes espectrales de pulso. El *SLM* está compuesto por un array de 320 píxeles de cristal líquido que pueden modificar, de forma independiente y bajo demanda, su índice de refracción. Ello permite que las componentes de frecuencia del espectro que viajan por cada uno de los píxeles experimenten un camino óptico diferente: estamos modificando su fase relativa (fig. 3.6<sup>33</sup>). La disposición geométrica de los píxeles puede observarse en la Figura 3.7.

La superficie que ocupa la mascara de fases tiene 32 mm de ancho por 13 mm de altura, cada uno de los pixeles tiene  $97\mu\text{m}$  de anchura y se encuentran separados por zonas opacas de  $3\mu\text{m}$ . Un 3 % de la energía espectral se pierde en estos espacios de separación, que también son responsables de una cierta modulación temporal<sup>34</sup>.

Cada pixel del *SLM* es básicamente un lamina retardadora controlada por voltaje, consistente en una capa de cristal líquido nemático entre dos sustratos de vidrio. Para cada pixel se disponen electrodos transparentes de *ITO*<sup>35</sup> y una capa de alineación

<sup>32</sup>El SLM-320 nos permite, potencialmente, trabajar mediante modulación de amplitud, si quisiéramos realizar a la vez modulación de fase y amplitud necesitaríamos dos dispositivos de modulación

<sup>33</sup>Figura inspirada en <https://www.mbi-berlin.de/en/research/projects/4-1/subprojects/UP2/>

<sup>34</sup>Es equivalente a someter al espectro a una serie de “compuertas” cómo se analizará en el apartado 3.3.3

<sup>35</sup>Indium Tin Oxide. Óxido de indio y estaño

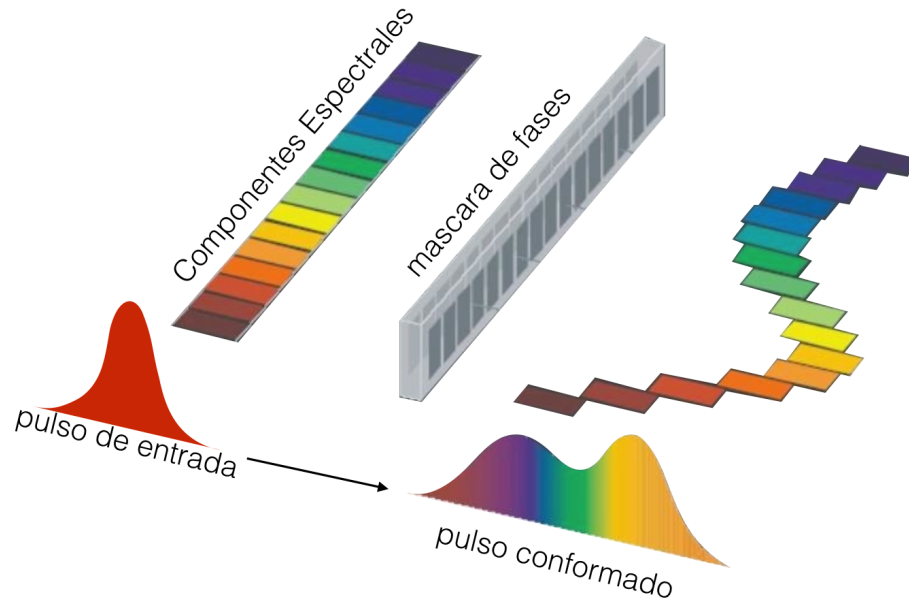


Figura 3.6: Cada una de las componentes de frecuencia experimentan un camino óptico diferente en *SLM* que podemos modificar a voluntad. De esa forma modificamos la fase espectral en el pulso y su conformación temporal.

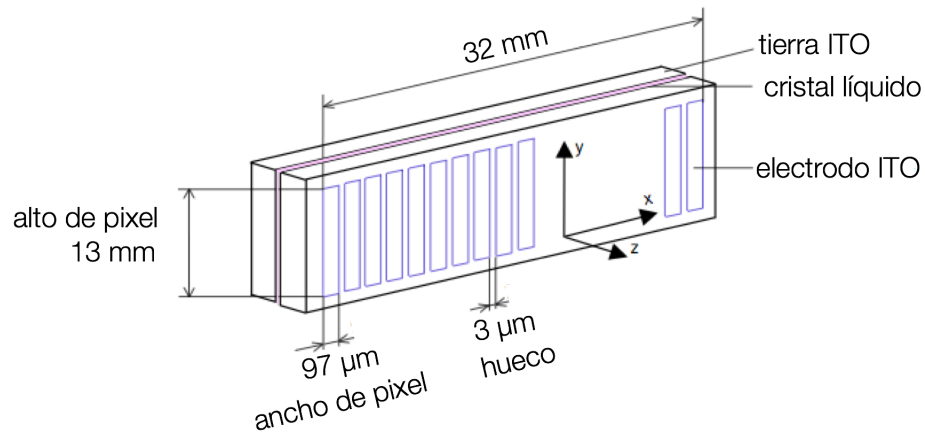


Figura 3.7: Distribución física de los píxeles en el SLM. Cada uno posee una ventana de 97  $\mu\text{m}$  con una área opaca de 3  $\mu\text{m}$ . Un 3 % de la energía espectral se pierde en la transmisión

para la orientación geométrica de las moléculas (Figura 3.8).

Debido a su forma, las moléculas del cristal líquido tienden a orientarse de forma paralela, generando una anisotropía óptica. En ausencia de voltaje, las moléculas se

alinean a lo largo del eje  $x$  (fig. 3.8), que es el eje óptico. Un haz polarizado en el eje  $x$  experimenta el índice ordinario,  $n_o$ , del medio, mientras que un haz polarizado en el eje  $y$  experimenta el índice extraordinario,  $n_e$ . Al aplicar un voltaje  $V$  sobre los electrodos las moléculas tienden a alinearse respecto al campo eléctrico aplicado, disminuyendo  $n_e$ . Esta modificación de  $n_e$  es la responsable de la modulación de fase. Los píxeles funcionan sobre 8V y el controlador del sistema nos proporciona de  $2^{12}$  niveles de control de este voltaje ( $0V=0$  y  $8V=4095$ ).

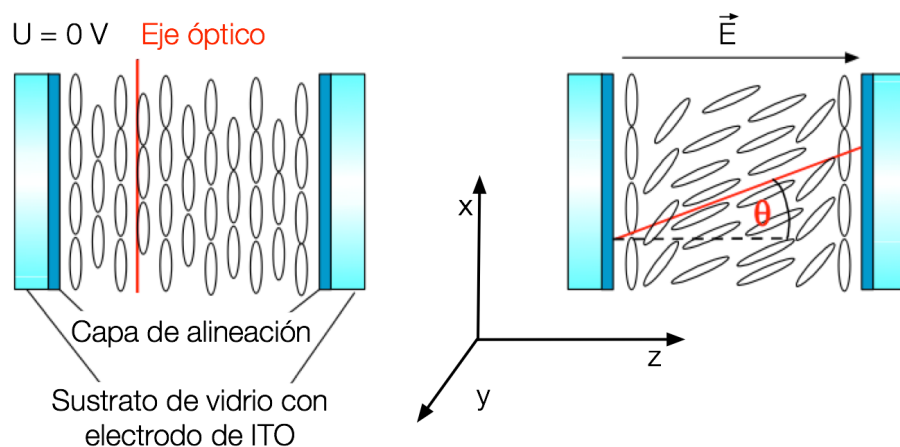


Figura 3.8: Las partículas nemáticas que conforman el cristal líquido se orientan con el campo eléctrico aplicado,  $E$ , entre los electrodos, modificando su eje óptico.

La variación del índice de refracción extraordinario en función del voltaje aplicado ha de ser calibrada ya que no todos los dispositivos fabricados tienen exactamente la misma repuesta. Además,  $n_e$  depende de la longitud de onda aplicada: cada una de las frecuencias sufre un cambio de fase ligeramente diferente para un mismo voltaje aplicado. En nuestro caso la curva de calibración la hemos realizado tomando como fuente láser el oscilador de fs, centrado en 799 nm, utilizando el esquema que se muestra en la Figura 3.9

Para realizarla se colocan polarizadores cruzados a ambos lados del *SLM* y se mide la curva de transmitancia (fig3.9) del haz del oscilador frente al cambio de voltaje en los píxeles del *SLM*. La transmitancia en función del voltaje se muestra en escala logarítmica para poder apreciar los cambios a niveles bajos de voltaje. A partir de las modificaciones de transmitancia se obtiene el cambio de fase que se introduce en función de la tensión aplicada. En la Figura 3.10 puede verse la curva obtenida, en la que se muestra el cambio de fase conseguido frente al valor de voltaje. Cuando el voltaje es máximo ( $8V=4095$ ), las moléculas del cristal líquido tienen la máxima orientación en el eje de propagación del haz (eje  $Z$ ), presentando el menor desfase posible que podemos conseguir. cómo se aprecia en la curva este cambio mínimo no

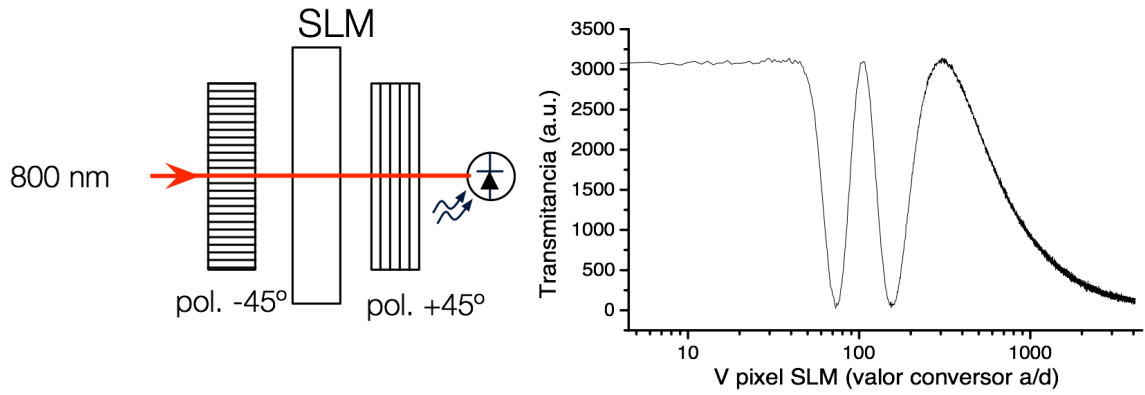


Figura 3.9: Para la calibración del *SLM* se miden los cambios de intensidad de una fuente de luz monocromática colimada a través del *SLM* frente a los cambios de voltaje en los píxeles. Antes y después del mismo se han colocado dos polarizadores cruzados a  $\pm 45^\circ$  respecto al eje horizontal. De esta forma es utilizado como modulador de amplitud, midiendo la transmitancia en función del voltaje aplicado a los píxeles

es de 0 rad. El cambio de fase máximo que podemos obtener es superior a 16 radianes, correspondiente a la aplicación del nivel 0 de voltaje.

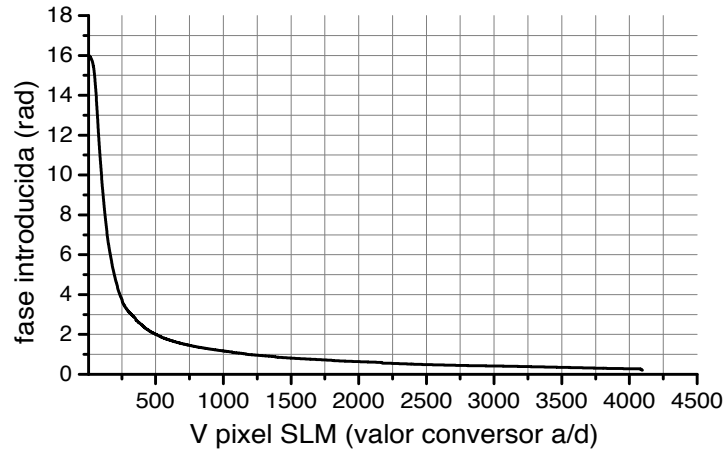


Figura 3.10: Curva de cambio de fase inducido en función de la tensión aplicada a los píxeles correspondiente a 799 nm. El desfase mínimo aplicable no es de 0 radianes, la curva presenta una acusada no-linealidad al incrementar el desfase

Dado que generalmente los cambios de fase necesarios en el diseño de los pulsos conformados supera ampliamente los 16 radianes, hemos de trabajar con la fase enrollada, acotando la zona de trabajo entre 0 y  $2\pi$  radianes, utilizando valores de voltaje que estarán entre los niveles  $\approx 350$  y 4095. Se escoge esta zona de la curva por ser donde menor pendiente existe presentando, por tanto, mayor controlabilidad.

### 3.3.3. Limitaciones del sistema

La implementación experimental del sistema 4f presenta desviaciones frente al caso ideal. Sucede lo mismo con el elemento de control de fase, presentandose diversos problemas asociados a su construcción y funcionamiento, que afectan a la capacidad de control en la optimización, como veremos a continuación.

En el capítulo 5 (Restricciones experimentales, página 96) veremos las consecuencias que de estos y otros fenómenos tienen en la fidelidad de observación de los fenómenos a optimizar.

#### 3.3.3.a. Resolución en la aplicación de la fase

Tal y cómo se aprecia en la Figura 3.10 el número de puntos de control disponibles para el control de la fase es diferente en cada una de los cuadrantes en los que podemos dividir el espacio de fases. como consecuencia, el error introducido será diferente según la fase aplicada. En el cuadro 4.1 (página 49) se muestra la capacidad de control por cuadrantes de fase. En el primer cuadrante disponemos de aproximadamente 3500 puntos de control de fase pasando a 45 en el último. Este cambio de granularidad en el control de la fase nos afecta negativamente al control que podemos ejercer, especialmente en la zona cercana a  $2\pi \text{ rad}$

#### 3.3.3.b. Modulación de amplitud

Cómo consecuencia de la resolución espacial finita y discretizada, cuando el salto de fase es muy brusco entre píxeles adyacentes, cómo ocurre en las fronteras de la fase enrollada, aparece una modulación de amplitud en el espectro [52], este efecto tiene un impacto no despreciable sobre la energía espectral.

Se puede apreciar este efecto en la Figura 3.11 donde los saltos de fase son claramente apreciables. Se muestran imágenes de transmisión de la máscara de fases obtenidas utilizando luz blanca proyectada sobre una pantalla a través del *SLM*. La imagen superior derecha corresponde a una consigna de 0 radianes en todos los píxeles. Las franjas verticales que aparecen en la imagen superior izquierda corresponden a los saltos de fase producidos por la máscara mostrada. Estas sombras implican una pérdida de energía espectral del pulso, que se suman a las producidas por el espacio opaco entre píxeles y afectan a la conformación temporal. Suponen una fluctuación

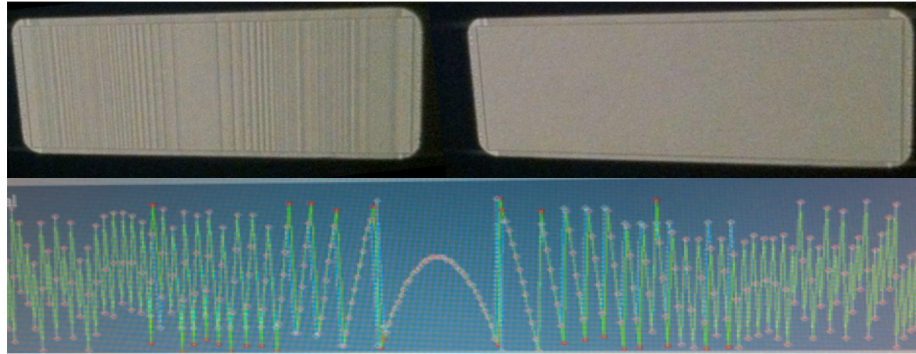


Figura 3.11: Transmisión del SLM con (superior izquierda) y sin (superior derecha) una fase aplicada (inferior). Los saltos bruscos de fase entre pixeles adyacentes generan una modulación de intensidad que podemos apreciar en forma de sombras. En las imágenes de transmisión podemos distinguir la zona de pixeles, área rectangular central, y los electrodos en la parte inferior y superior.

de la energía del pulso que no está directamente relacionada con la conformación temporal que la fase debería producir, y por lo tanto afectan a nuestra observación experimental. Este efecto, además, implica la aparición de fenómenos difractivos sobre el espectro, provocando también que una fracción no despreciable de la energía espectral quede fuera del camino óptico del sistema 4f, provocando una pérdida no controlada de energía extra.

### 3.3.3.c. Dependencia del cambio de fase con longitud de onda

La curva *fase-tensión*, Figura 3.10, relaciona la tensión aplicada con el cambio de fases inducido. Este cambio de fase está relacionado con el diferente camino óptico que experimentan las diferentes frecuencias, será por lo tanto será diferente para cada longitud de onda.

Hemos intentado caracterizar esta dependencia sustituyendo el fotodiodo de la Figura 3.9 por un Analizador de Espectros Óptico (OSA)<sup>36</sup>, de esta forma se pueden obtener las curvas de cambio de fase para cada longitud de onda dentro del espectro del oscilador de fs. El resultado se muestra en la Figura 3.12

Todas las curvas ofrecen el mismo comportamiento global, con ligeras desviaciones dependientes de la longitud de onda específica. Cuando las observamos en detalle estas diferencias se tornan mas evidentes, tal y como podemos ver en la Figura 3.12(detalle). En la misma se ve ampliada la zona correspondiente al mínimo desfase aplicable y a la zona donde el desfase es fase  $2\pi rad$ . Se observa cómo el rango de valores de cambio

<sup>36</sup>Optical Spectrum Analyzer YOKOGAWA 6370B

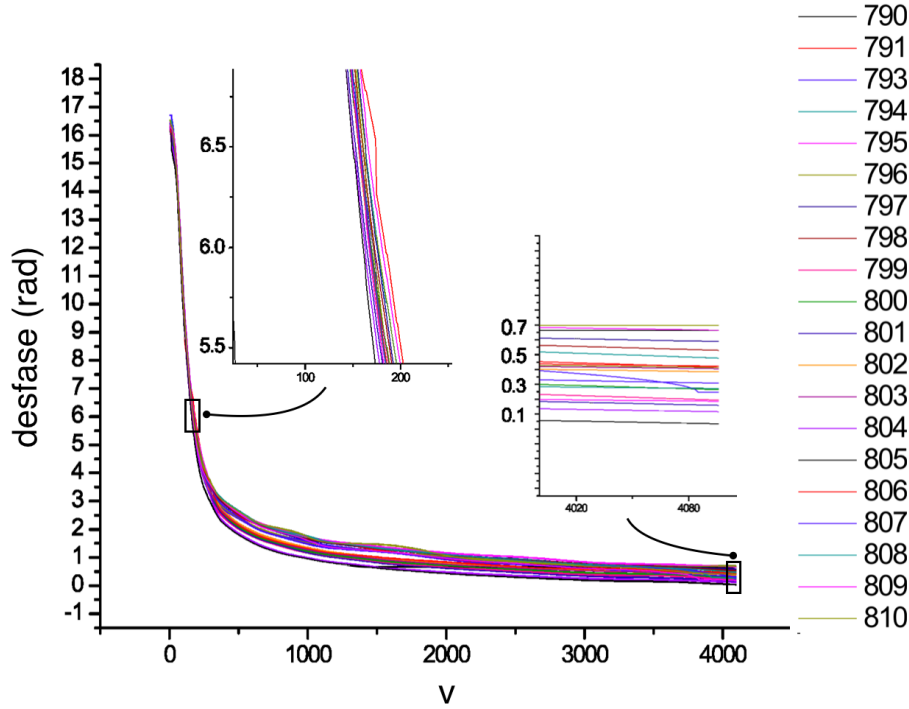


Figura 3.12: Curvas de *fase-tensión* para longitudes de onda ( $\lambda$ ) entre 790 nm y 810 nm. Cada  $\lambda$  es afectada de forma ligeramente diferente por el índice extraordinario. Detalles de las curvas fase-tensión del entorno de fase 0 y fase  $2\pi$ , los errores debidos a la utilización de una sola curva de calibración se incrementan al aumentar el cambio de fase inducido

mínimo de fase, en nuestro ancho espectral es de hasta 0.7 radianes ( $\approx 40^\circ$ ). Este error es importante, pero no tanto cómo el que se produce al trabajar en el cuarto cuadrante. En esta zona, por su elevada pendiente, el error cometido puede llegar a ser de varios radianes.

No hemos podido establecer sin dudas que las medidas anteriores no estén contaminadas por efectos de automodulación de fase en la fibra óptica utilizada. Así pues hemos decidido trabajar con solo una de las curvas de calibración, la correspondiente a la frecuencia central de nuestro pulso, 799 nm. Las posibles desviaciones de establecimiento de fase derivadas de la dependencia con la longitud de onda quedan, por lo tanto, dentro del problema de optimización objetivo de esta tesis.

#### 3.3.3.d. Acoplamiento espacio-temporal

La resolución espacial finita que nos ofrece tanto en el sistema 4f cómo el *SLM* tiene cómo consecuencia la existencia de un acoplamiento espacio temporal [53]. En



pocas palabras, cuando el haz conformado mediante un sistema 4f es enfocado existirán variaciones, tanto de la posición espacial del foco [45] cómo de su distribución espectral en el mismo [54], que serán dependientes de la fase aplicada. El desplazamiento espacial puede no tener relevancia en los casos donde la muestra irradiada sea lo suficientemente homogénea y se utilice un adecuado sistema de detección que pueda acomodar dicho desplazamiento. Sin embargo, cuando la muestra se encuentra en la nanoescala, o es enfocado fuertemente, sus efectos no pueden ser ignorados [55].

### 3.4. Caracterización temporal con PG-FROG

Las limitaciones en la velocidad de los dispositivos electrónicos hacen necesario la utilización de métodos indirectos para la caracterización temporal (intensidad/espectro) de los pulsos ultracortos. La reconstrucción del perfil temporal de intensidad y fase de un pulso ultracorto requiere la utilización de otro pulso ultracorto y una interacción óptica no-lineal.

Un pulso láser queda completamente definido por su campo eléctrico en el dominio del tiempo,  $E(t)$ , o de la frecuencia,  $\tilde{E}(w)$ . El objetivo de la caracterización es conocer, sin ambigüedades, tanto la intensidad cómo la fase en ambos dominios.

Para la caracterización completa de pulsos ultracortos las técnicas mas destacadas son *SPIDER* (*Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction*) [56], *GRENOUILLE* (*Grating-eliminated no-nonsense observation of ultrafast incident laser light e-fiels*) [57] y *FROG* (*Frecuency Resolve Optical Gating*) [2]. Esta última es la que se ha implementado para la medición de pulsos ultracortos en el laboratorio del Grupo de Procesado por Láser del CSIC.

Antes de la aparición de la técnica *FROG* para caracterizar un pulso láser se disponía de sistemas de autocorrelación y correlación cruzada así cómo de espectrómetros. En los autocorreladores<sup>37</sup> el pulso es dividido en dos, con un camino óptico (retardo) variable de un pulso respecto al otro. Los pulsos interactúan sobre un medio con respuesta no-lineal instantánea, ofreciendo la respuesta expresada en la formula 3.4. Típicamente se utiliza el proceso de Generación de Segundo Armónico (*SHG*). La *SHG* genera un campo al doble de la frecuencia del de los haces incidentes con una intensidad que es proporcional al producto de la intensidad instantánea de ambos pulsos. Este mecanismo de generación de frecuencias ofrece ciertas características que hace que sea utilizada en varios experimentos de esta tesis<sup>38</sup>. La amplitud de la señal

<sup>37</sup>El proceso descrito es idéntico en el caso de los correladores cruzados, en los que se utiliza un pulso conocido para realizar la medición en vez de la división del pulso.

<sup>38</sup>Capítulo 5.3, página 107, donde se ofrece una explicación mas detallada del proceso de generación de segundo armónico

generada viene dada por

$$A(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t - \tau)dt \quad (3.4)$$

El resultado experimental de la autocorrelación se obtiene variando  $\tau$ , el retardo relativo entre ambos pulsos y midiendo la intensidad de *SHG* correspondiente. Este sistema no ofrece una caracterización temporal precisa del pulso, la estructura fina queda oculta, e irre recuperable, debido al proceso de la autocorrelación en sí. Además, al ser la señal de los sistemas de detección proporcional al módulo del campo, la información de fase no es accesible.

Una implementación experimental que es capaz de evitar estos problemas y ofrecernos información acerca de la fase del campo es *FROG*. Básicamente es un sistema de autocorrelación temporal resuelto espectralmente que permite observar cómo varían las componentes espectrales del pulso a lo largo del tiempo.

Existen múltiples implementaciones de este concepto, dependiendo del fenómeno de interacción no-lineal (segundo armónico, tercer armónico,...), siendo la que hemos elegido Polarization Gate-FROG, *PG-FROG*, en adelante *FROG*. Esta ha sido elegida debido a que no presenta ambigüedades en la dirección del tiempo cómo si ocurre con *SHG-FROG*. La configuración experimental se muestra en la Figura 3.13.

PG-FROG utiliza cómo interacción no-lineal el efecto de puerta óptica *Kerr*. Cómo vemos en la Figura 3.13 el pulso es dividido en dos mediante el divisor de haz de la entrada, obteniendo el pulso de excitación o puerta y el pulso de muestreo. El pulso de muestreo viaja a través de dos polarizadores cruzados, actuando el primero cómo polarizador y el segundo cómo analizador. El segundo pulso viaja a través de una lámina retardadora  $\lambda/2$  de forma que se fuerza un desfase de polarización de  $45^\circ$  respecto al pulso de muestreo. Los dos pulsos son enfocados y solapados espacialmente en un medio con respuesta no-lineal intensa. En nuestro caso se ha utilizado una lamina de SF57 (*Schott*) de  $\approx 100\mu m$ .

El pulso de puerta genera una birrefringencia inducida en la lámina de SF57 por efecto *Kerr*<sup>39</sup> electrónico. Cómo resultado, la lamina de SF-57 actúa cómo lamina retardadora variable cuyo desfase depende de la intensidad del pulso de excitación. La combinación de polarizador-analizador que atraviesa el pulso de muestreo hace que, en ausencia de dicha birrefringencia inducida, el pulso sea rechazado en el analizador. La rotación de polarización inducida por la puerta Kerr permite a una porción del pulso de muestreo atravesar el analizador y ser detectada en un espectrómetro. Mediante la traslación de la linea de retardo, a través de la que viaja el pulso puerta, se hace un barrido temporal que nos permite obtener el registro espectral en función del tiempo de la interacción entre ambos pulsos. Esto constituye la traza de FROG. La intensidad

---

<sup>39</sup>Kerr Polarization Gating

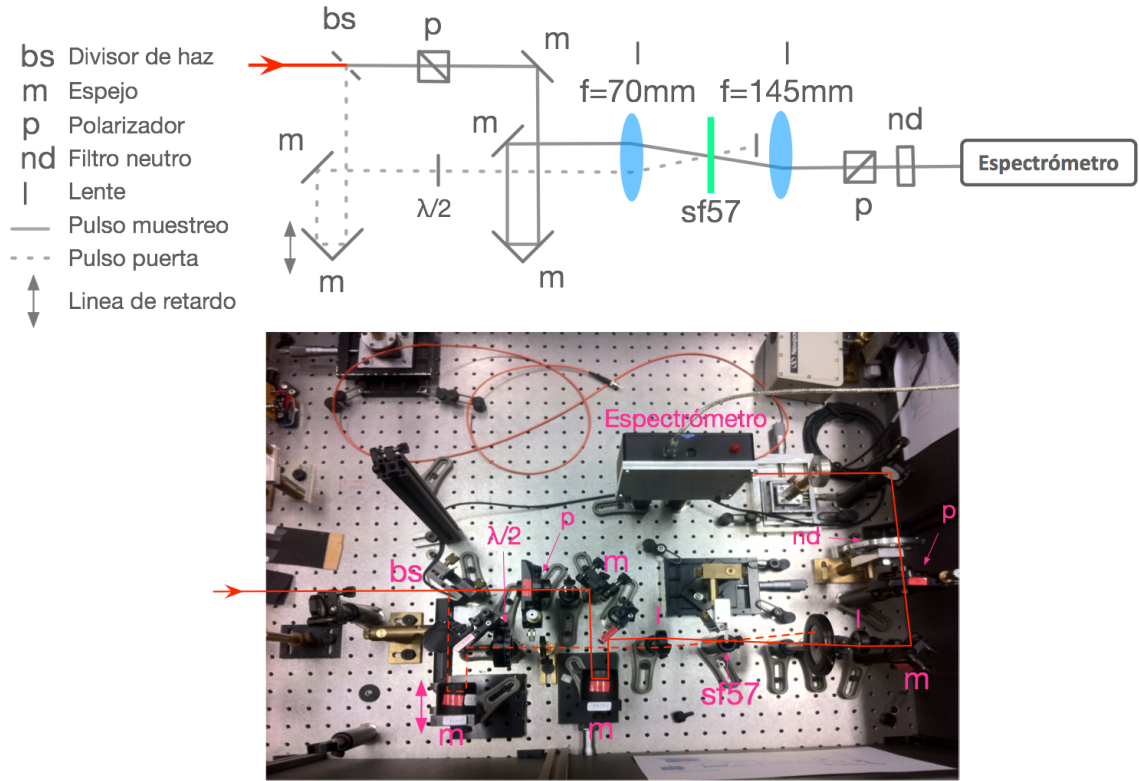


Figura 3.13: Representación esquemática de *PG-FROG* e implementación experimental. El pulso de entrada es dividido en el de muestreo, que viaja a través de un par polarizador-analizador hasta el espectrómetro, y el de puerta, dotado de un retardo ajustable, que genera el efecto puerta *Kerr* que permite medir el pulso de muestreo.

de señal registrada corresponde a

$$I_{PG-FROG}(w, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E(t) - |E(t - \tau)|^2 e^{-iwt} dt \right| \quad (3.5)$$

Las trazas de *PG-FROG* ofrecen una representación intuitiva y directa de lo que esta sucediendo en el pulso, reflejando con precisión la evolución de las componentes espectrales a lo largo del tiempo. Diferentes trazas de *PG-FROG* típicas se muestran en la Figura 3.14.

Se muestran las trazas correspondientes al pulso gaussiano mas corto posible para un espectro determinado ( fase plana), denominado pulso por transformada, así cómo a pulsos con trino de diferente signo.

Una vez obtenida la traza de *FROG* del pulso es necesario aplicar algoritmos de recuperación de fase. Estos se encargan de la deconvolución de la señal para obtener,

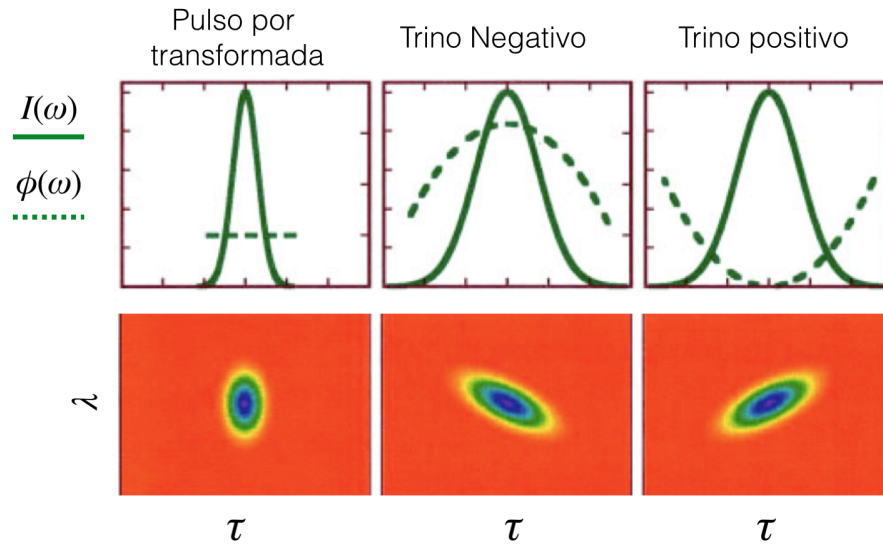


Figura 3.14: Trazas de FROG típicas. De izquierda a derecha de un pulso por transformada, pulso con trino negativo y pulso con trino positivo [2].

sin ambigüedades, la caracterización completa del pulso, obteniendo su amplitud y fase, tanto espectral como temporal.

## Capítulo 4

### Soluciones propuestas

## 4.1. Introducción

Hemos visto cómo para modificar la estructura temporal de nuestros pulsos utilizamos el filtrado de Fourier en el espacio de frecuencias mediante modulación de fase, así como el soporte experimental utilizado para su implementación y medición, pero ¿Cómo trabajamos con la fase? y ¿cómo encontramos la mejor fase para optimizar el efecto a estudiar?

Estas dos preguntas son el eje fundamental de este capítulo, en el que trataremos:

- El espacio de control: La manipulación de la fase se realizara mediante el SLM que nos proporciona 320 puntos de control. Veremos cómo se trabaja con ellos.
- La optimización: Una vez establecidos los parámetros bajo los que se va a manipular la fase se pasará a la fase de optimización. En esta se realiza la búsqueda y determinación de la fase adecuada para optimizar el efecto deseado.

A lo largo del capítulo veremos cómo se ha realizado una reducción de dimensionalidad sobre el espacio de control para hacer el problema mas accesible, intentando no perder capacidad de manipulación temporal de la energía del pulso. ¿Exploramos en el tiempo o en la frecuencia?, ¿codificamos con fases o con tensiones? Hay ciertas decisiones que se han de tomar, explicaremos cuáles y por qué las hemos tomado.

En el terreno de la optimización se verá cómo funcionan los algoritmos de optimización utilizados, tema central de esta tesis. Se utilizarán dos algoritmos evolutivos: algoritmos genéticos (*AG*) y *differential evolution* (*DE*), así como un algoritmo con una filosofía de funcionamiento completamente diferente: es de tipo determinista. Se ha desarrollado específicamente teniendo en cuenta ciertas características topológicas esperadas del espacio de soluciones. Puede ser una alternativa real y eficiente al enfoque evolutivo tradicional, al menos en un grupo de problemas que posean dicha topología. Si bien existen métodos teóricos para estudiar las propiedades de convergencia de un algoritmo, sólo su aplicación práctica sobre un número suficiente de problemas nos puede ofrecer una perspectiva de su comportamiento. En el capítulo 5 veremos el comportamiento de los algoritmos en experimentos reales.

## 4.2. Modelo del espacio de control

### 4.2.1. Capacidad de control sobre la fase

Nuestro espacio de control está constituido por 320 elementos independientes de control de fase, pixeles en el *SLM*, cada uno de ellos con un rango de modificación de fase de hasta 16 radianes. Esta excursión de fase es una limitación seria a la hora de conformar pulsos. Para poder alcanzar valores superiores a estos 16 *rad* de fase sobre

el espectro hemos de trabajar con la fase enrollada, con lo que cada pixel manejará un rango de fases  $[0-2\pi)$ .

El valor de la tensión de control de fase aplicable está cuantificado por un controlador de 12 bits (4096 niveles). Debido a que la zona en la que el desfase inducido es superior a  $2\pi$  no se utiliza, el rango de uso se restringe al intervalo 150-4095. Esta es una reducción mínima en el espacio ya que seguimos necesitando 12 bits para cuantificarlo.

cómo vimos en la Figura 3.10, página 39, la relación tensión aplicada-fase proporcionada, no es lineal. Este hecho condiciona la controlabilidad de la fase. En el cuadro 4.1 se muestra el número de puntos de control correspondientes a los cuadrantes del plano polar. cómo puede verse existen niveles de cuantificación muy diferentes en cada cuadrante. Esto representa un serio problema de precisión a la hora de imprimir la fase y es insalvable<sup>40</sup>, ya que está determinado por el comportamiento del cristal líquido. Disponemos de una resolución de  $4.5 \text{ E-}4 \text{ rad}$  ( $0.026^\circ$ ) en el primer cuadrante,  $5.2\text{E-}3 \text{ rad}$  ( $0.29^\circ$ ) en el segundo,  $1.9\text{E-}2 \text{ rad}$  ( $1.1^\circ$ ) en el tercero y  $3.4\text{E-}2 \text{ rad}$  ( $2^\circ$ ) en el cuarto.

Cuadrante	Ptos de control	resolución(rad/grados)
1º, $0-\pi/2$	3500	$4.5\text{E-}4/2.57\text{E-}2$
2º, $\pi/2-\pi$	300	$5.2\text{E-}3/0.29$
3º, $\pi-3\pi/2$	80	$1.9\text{E-}2/1.125$
4º, $3\pi/2-2\pi$	45	$3.4\text{E-}2/2$

Cuadro 4.1: Número de puntos de control de fase por cada cuadrante

A estos errores debidos a la granularidad en el control de la fase hemos de añadir los errores asociados a la utilización de una sola curva de calibración. Tendremos una respuesta ligeramente diferente en cada una de las longitudes de onda manipuladas. Por tanto, el error que introducimos va a depender tanto del pixel (frecuencia) en el que estamos trabajando cómo de la fase introducida. Por ejemplo, al introducir la fase mínima aplicable (fig.3.12), el valor de offset introducido puede hacer variar la fase hasta  $0.7\text{rad}$  ( $40^\circ$ ) dependiendo de la longitud de onda. En la zona cercana a  $2\pi$ , debido a la elevada pendiente de la curva fase-tensión, este error es considerablemente mayor.

Se ha determinado asumir que estos errores, tanto los derivados de la dependencia de la longitud de onda, cómo los de la cuantificación de la fases, formen parte del problema. En consecuencia hemos optado por trabajar con una sola de las curvas de

<sup>40</sup>Una variación experimental que contribuiría a mejorar esta limitación sería la utilización de una configuración de pulse shaper en doble paso, de esta forma la sección de fases sobre la curva estaría limitada a  $[0-\pi)$ , disponiendo de una mejora sustancial en el control con tres veces mas resolución en el cuarto cuadrante que es el que mas problemas presenta en este aspecto.

fase-tensión, utilizando la curva correspondiente a la  $\lambda$  central de nuestro espectro,  $799nm$ .

### 4.2.2. Espacio de manipulación de parámetros

Los algoritmos trabajan con abstracción de los datos y pueden realizar la exploración tanto en el espacio de tensiones cómo en el de fase espectral. Hemos optado por trabajar con valores de fase, realizando una traslación a tensiones mediante la curva de calibración. De esta forma manipulamos directamente sobre el espacio de control (espacio de fases) y las operaciones necesarias, cómo el enrollado de la fase, se simplifican notablemente. Una ventaja añadida de trabajar con la fase es la posibilidad de incorporar con facilidad diferentes dispositivos de control<sup>41</sup> o incluir las curvas de *fase-tensión* adecuadas para cada longitud de onda.

### 4.2.3. Elección del espacio de búsqueda

Una última decisión que ha de tomarse es en qué espacio que va a realizar la búsqueda. Disponemos de dos espacios recíprocos, frecuencia y tiempo. Ya que estamos optimizando una interacción no-lineal dependiente de  $E(t)$ , puede parecer interesante trabajar directamente sobre la forma temporal del pulso. Dos han sido las principales razones que nos han hecho descartar esta aproximación:

- cómo se ha visto los problemas de granularidad en el control de la fase y la dependencia de la longitud de onda generan limitaciones en la precisión de ajuste de fase y errores a la hora de imprimir la fase requerida. Para poder explorar adecuadamente en el tiempo sería necesaria una caracterización exhaustiva del sistema.
- Resulta conveniente trabajar directamente en el espacio de control, y no de forma indirecta, cómo sería hacerlo a través del tiempo. La posible acumulación errores en el proceso de conversión y aplicación supondría una dificultad extra en la localización del óptimo en el espacio de búsqueda.

Por lo tanto, se decidió realizar la búsqueda directamente sobre el espacio de fases.

### 4.2.4. Codificación de la fase

La dimensionalidad del espacio de control es un elemento que condiciona la velocidad y, por lo tanto, la eficiencia de la optimización. Hemos de intentar evitar que

---

<sup>41</sup>La abstracción de cómo se implementa esa fase dependerá de cada dispositivo y será independiente de la implementación del algoritmo de búsqueda



los tiempos de optimización se conviertan en inabordables en el mundo experimental, así que el primer paso a realizar es una reducción de la dimensionalidad del problema en la forma  $S^{nPíxeles} \rightarrow S^D$ . Mediante una relación de transformación podemos representar los 320 píxeles con  $D$  variables de control, siendo  $D < 320$ . Por supuesto, esta reducción no es gratuita, al realizar una transformación entre los dos espacios estamos introduciendo una segmentación artificial sobre el espacio original de búsqueda, que va a limitar nuestra capacidad de control temporal. Es conveniente utilizar una segmentación versátil y no agresiva.

La solución mas ampliamente adoptada para reducir la dimensionalidad del problema es la utilización de una modelización donde la fase es representada mediante un número reducido de términos de una serie (*Taylor, Legendre, Chebyshev,...*) [22], pero este tipo de representación tiene varios problemas asociados que nos han hecho descartarla, entre los que destacamos:

- Determinadas series presentan problemas. Por citar un ejemplo las series polinómicas sufren del fenómeno de Runge [58], que surge cuando usamos interpolación polinómica de alto grado para aproximar funciones de cierta complejidad. El resultado es que al incrementar el grado del polinomio para conseguir un mejor ajuste nos podemos encontrar con que aumentamos el error de la aproximación.
- La elección de la cantidad de términos de la serie y de la serie en sí, limita seriamente las soluciones que son accesibles en el problema [22]. Esta segmentación del espacio de soluciones, que no es exclusiva del uso de series, se traduce en una limitación de las conformaciones de fase expresables y, por lo tanto, de las formas temporales que puede generar el sistema.
- Ese tipo de implementación nos obliga a trabajar con la fase desenrollada y posteriormente enrollarla para imprimirla en el sistema. Ello obligaría a una caracterización exhaustiva de los problemas los derivados de las limitaciones intrínsecas del sistema experimental que se han mostrado en el apartado 3.3.3.

Es por ello por lo que se ha optado por trabajar directamente mediante una codificación **pixel a pixel**. Cada una de las nuevas  $D$  dimensiones actúan como un nodo de control sobre la fase, compuesta por  $nPíxeles$ <sup>42</sup>, aplicando un procedimiento de interpolación entre ellos. De esta forma podemos tener el máximo control posible de la fase,  $D = nPíxeles$ , o utilizar  $D < nPíxeles$ . El segundo motivo para la elección de esta codificación es el algoritmo desarrollado, *MODS*. Dicho algoritmo tiene entre sus fundamentos la hipótesis de que estos puntos de control están fuertemente acoplados en el tiempo y que pueden ser sometidos a optimización marginal. Veremos el funcionamiento de *MODS* en detalle en el apartado 4.5.

<sup>42</sup>En nuestro caso los 320 píxeles de que dispone el *SLM*

Se utilizará una distribución equiespaciada de  $D$  nodos a lo largo del espacio de control. La utilización de una densidad variable en el posicionamiento de los nodos de control podría presentar ventajas, por ejemplo, la estructura de fase en la zona espectralmente mas energética suele tener mas riqueza y podría requerir un mayor número de nodos para poder definirla. Este punto no se ha explorado en el desarrollo de esta tesis, constituyendo una linea futura a explorar.

La fase  $\Phi_w$  esta representada, por lo tanto, por un conjunto de  $D$  puntos de control que constituyen los parámetros sujetos a optimización

$$\Phi_w = (\phi_i) \ i = 1, \dots, D \quad (4.1)$$

Cuando  $D = nPixels$  se obtiene el máximo control posible disponible y la aplicación sobre el SLM es directa. Si  $D < nPixelSLM$ , hemos de realizar una relación de transformación

$$\Phi_{SLM} = TR(\Phi_w) \quad (4.2)$$

$$\Phi_{SLM} = (\Phi_p) \ p = 1, \dots, nPixels; \quad (4.3)$$

Esta transformación será realizada mediante una interpolación de los valores de fase de los  $D$  puntos de control sobre el plano polar.

#### 4.2.5. Interpolación de puntos de control de la fase

La fase  $\Phi_w$ , es representada por  $D$  parámetros que constituyen los nodos de control de ajuste de la fase a imprimir sobre el espectro  $\phi_{SLM}$ . Esta reducción de dimensionalidad,  $D < nPixels$ , implica que los valores de los píxeles intermedios entre nodos han de ser interpolados, existiendo principalmente dos posibles opciones:

1. Extensión del un nodo. Los nodos intermedios toman el mismo valor que el nodo mas cercano, de esta forma la fase toma valores discretos.
2. Interpolación de valores. Los nodos intermedios toman valores interpolados de forma continua entre nodos.

La primera opción discretiza los valores de fase generando saltos bruscos. Tal y cómo hemos visto en el Capitulo 3.3.3, los saltos bruscos de fase entre pixeles adyacentes introducen una modulación de amplitud en el pulso. En la práctica se traduce en modificaciones de la señal medida no relacionadas con la estructura temporal del pulso. Si bien este ruido de modulación puede ser admisible para las optimización mediante algoritmos evolutivos, *MODS*, el algoritmo desarrollado, utiliza información de las características topológicas del espacio de soluciones y esta modulación de amplitud

introduciría distorsiones topológicas que podrían dificultar su evolución satisfactoria. Por lo tanto hemos adoptado la interpolación continua entre los  $D$  nodos de control.

La interpolación se realiza en el plano polar. Cada uno de los  $D$  parámetros puede adoptar un valor que oscila entre  $\pm\pi$  respecto a sus nodos adyacentes. Si bien se contempló la posibilidad de usar una interpolación suave, via *spline* por ejemplo, el hecho de trabajar directamente con la fase enrollada implica aplicar saltos bruscos de fase, cómo veremos enseguida, por lo que es mejor opción trabajar con interpolación lineal. Los valores adoptados por los puntos intermedios de interpolación se muestran en la Figura 4.1. Supongamos que queremos interpolar los valores de fase entre un nodo con fase  $\phi_{ini}$  y otro con fase  $\phi_{fin}$ , con  $n_{int}$  puntos de interpolación entre ellas,

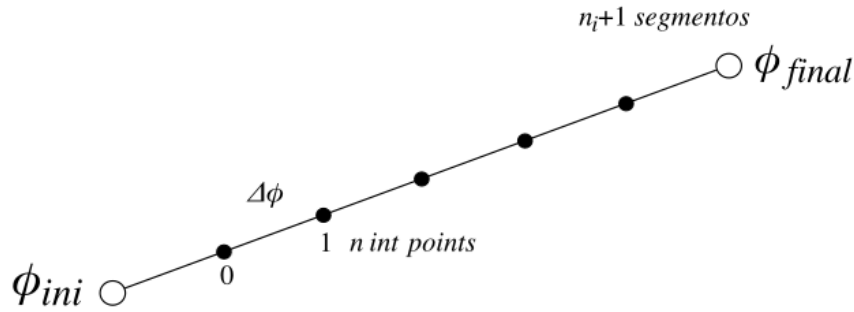


Figura 4.1: Puntos de interpolación entre dos nodos adyacentes. Al ser  $D < n_{Pixeles}$  hemos de estimar el valor de fase que deben adoptar los píxeles entre los  $D$  parámetros

El incremento de fase,  $\Delta_\phi$  en cada uno de los puntos de interpolación tomara el valor

$$\Delta_\phi = \left[ e^{j\frac{\phi_{ini}}{\phi_{fin}}} \right]^{\frac{1}{n_{ptosInterp}+1}} \quad (4.4)$$

y cada uno de los puntos interpolados será

$$\phi_n = e^{j\phi_{ini}(\Delta_\phi)^{n-1}}, n = 1, \dots, n_{ptosInterpolados} \quad (4.5)$$

Por supuesto, esta opción no está carente de problemas. El principal es que el enrollado de fase puede producir una discontinuidad en la forma temporal del pulso al explorar los valores de fase de un nodo. Para ilustrar este fenómeno en la Figura 4.2 se ha representado una fase, compuesta por 25 nodos sobre una envolvente espectral arbitraria (izquierda), en la que se varia la posición relativa de los nodos centrales. Las diferentes posiciones de los nodos dan lugar a una conformación temporal determinada (derecha). En la figura los nodos están representados por puntos rojos con la interpolación lineal entre ellos mostrada por una línea amarilla. La fase impuesta

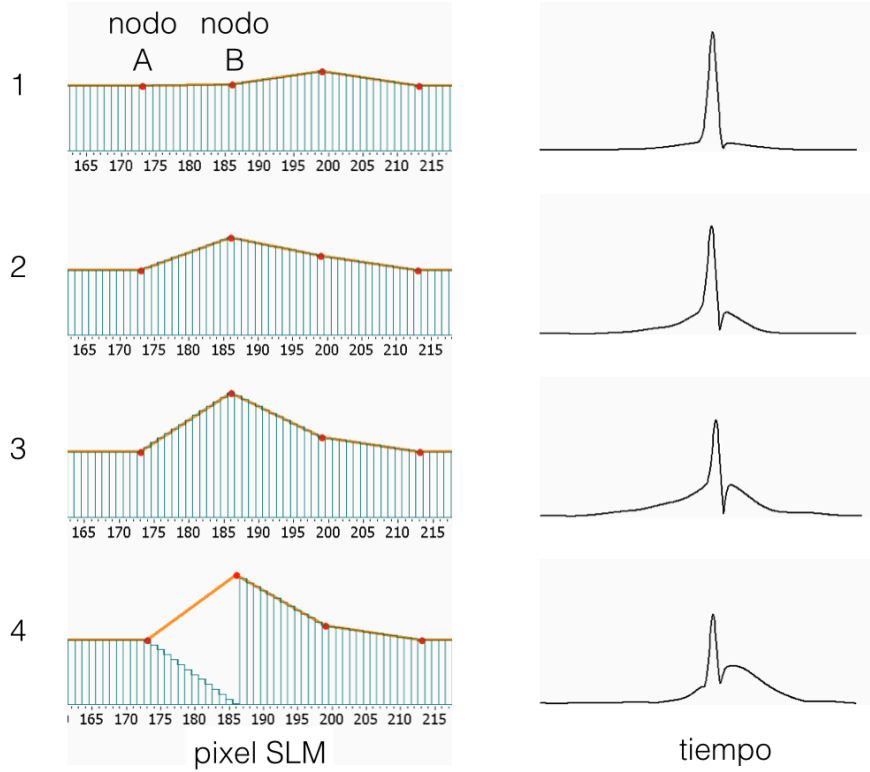


Figura 4.2: Exploración de la posición de un nodo. La forma temporal resultante presenta una transición continua con la exploración de la fase (1,2,3). Cuando la diferencia de fase entre dos nodos consecutivos es  $> 2\pi$  (4) se genera el enrollado de fases, provocando una discontinuidad de la transición de formas temporales.

sobre el *SLM*, correspondiente a la interpolación en el plano complejo, se muestra como barras verdes. En fig4.2.1 a 3 la distancia existente entre el *nodo a* y el *nodo b* es  $< 2\pi$ , bajo estas circunstancias (y para esta configuración de fase) la fase sobre el *SLM* coincide con la interpolación lineal. Se puede apreciar como la forma temporal asociada tiene continuidad con la distancia entre nodos. En la fig4.2.4 la distancia entre los nodos es  $> 2\pi$ , esto provoca el enrollado de fase, y se puede apreciar como hay un cambio brusco en la forma temporal. Este cambio temporal será mas o menos acusado dependiendo de la configuración de fases total, y tendrá como consecuencia una variación brusca entre los valores de evaluación experimental entre valores de fase próximos entre si, generando una discontinuidad en el espacio de soluciones.

### 4.2.6. Limitaciones por el número de nodos utilizados

El hecho de utilizar una reducción de dimensionalidad mediante la modelización por nodos, si bien consideramos que es la representación que introduce menos segmentación artificial sobre el espacio de soluciones, no está carente de limitaciones.

El número de puntos utilizados va a limitar la complejidad estructural que pueda adoptar la fase, Si  $D$  es demasiado bajo puede que no podamos representar fielmente la fase necesaria. Por otro lado, el teorema de Parseval establece dado un  $E(t)$  cuya transformada de Fourier es  $\tilde{E}(w)$ , la integral de  $|\tilde{E}(t)|^2$  es igual a la integral de  $|\tilde{E}(w)|^2$ . Esto es, la cantidad de energía en ambos dominios es la misma. En nuestro problema esto implica que el número de nodos de control utilizados determina cuales son los paquetes de energía temporal que podrá manejar cada nodo, la precisión que pueden alcanzar los ajustes temporales. Excepto en el caso del primer y último nodo cada uno de ellos va a manejar la energía asociada a  $n\text{Píxeles}/D - 1$  píxeles, ya que cada nodo maneja las fases comprendidas entre el y los nodos adyacentes, tal y como vemos en la Figura 4.8, página 75. La energía asociada a cada nodo dependerá de la proyección espectral sobre el modulador de fase.

Un número bajo de nodos nos presenta un posible submuestreo de la fase, pero por otro lado nos brinda mayor manejo de energía por nodo. O lo que es lo mismo, a mayor número de nodos utilizados, mejor sensibilidad y menor ruido debe tener nuestro sistema experimental, para poder detectar las contribuciones temporales de cada nodo. Esto es especialmente relevante en el caso de *MODS* ya que realiza optimización marginal sobre los nodos, en la que habrá que detectar la contribución individual de cada nodo sobre la interacción no-lineal a observación.

### 4.2.7. Multimodalidad intrínseca

Mas allá de otras consideraciones y problemas experimentales, el hecho de trabajar con modulación de fase implica multimodalidad. Diversas configuraciones de fase nos ofrecen la misma respuesta temporal y ,por lo tanto, el mismo resultado experimental. Podemos constatar de entrada que sobre la forma temporal del pulso existen dos fuentes de multimodalidad:

- Orden 0: Cualquier constante añadida a la fase mantiene la forma temporal del pulso.
- Orden 1: Cualquier cambio lineal en la fase mantiene la forma temporal del pulso, pero lo desplaza en el tiempo.

En principio esto no debe suponer un inconveniente en el proceso de optimización. La multiplicidad de existencia de buenas soluciones, de hecho, facilita la búsqueda,

pero puede dificultar la interpretación física de los resultados. Por su naturaleza, los algoritmos con base estocástica pueden acabar en cualquier punto del espacio de control con equivalencia temporal. El algoritmo desarrollado, *MODS*, es de naturaleza determinista, por lo que presenta la ventaja de ofrecer siempre la misma respuesta ante las mismas condiciones, sujeta a variaciones externas a el funcionamiento del mismo, cómo puede ser la presencia de ruido. En la práctica veremos cómo, por restricciones experimentales, esta multimodalidad no se cumple necesariamente, tal y cómo se muestra en el capítulo 5.1.2, donde se vera que ante la multimodalidad de orden 0 la conformación temporal se conserva, pero no lo hace la energía del pulso.

### 4.3. Algoritmo Genético

Los Algoritmos Genéticos (*AG*) fueron los primeros algoritmos de optimización aplicados en la optimización de la interacción láser-materia mediante conformación temporal de pulsos, demostrando la viabilidad de utilizar un sistema adaptativo para controlar la excitación de moléculas [10]. Junto con las estrategias evolutivas son los algoritmos mas utilizados en este tipo de problemas, pudiendo encontrar aplicaciones en propagación de pulsos en fibras ópticas [24], compresión de pulsos [25], alineación molecular [59] o control coherente [60] entre otros. Dada la amplia bibliografía y el extendido uso de este tipo de algoritmos evolutivos, mostraremos la base de su funcionamiento, remitiendo al lector a la literatura existente para mas detallada [61] [62].

Los (*AG*) fueron desarrollados en la década de los 70 por John Holland [63] y fueron resultado de sus investigaciones orientadas a explicar el proceso adaptativo de los sistemas naturales y el diseño de un sistema artificial que contuviera el mecanismo de la selección natural. Se desarrollo un algoritmo que tiene cómo modelo de funcionamiento la selección natural Darwiniana, es decir, la recombinación de genes a través de la reproducción sexual y la supervivencia de los individuos mejor adaptados. Se han demostrado adecuados para la resolución de un amplio espectro de problemas, siendo especialmente adecuados en la resoluciones de problemas no-lineales donde el espacio de soluciones es lo suficientemente extenso para que otros algoritmos de búsqueda exhaustiva resulten, en la práctica, inviables.

Entre sus características podemos destacar:

1. Los *AG* trabajan con una codificación de los parámetros de búsqueda, no con los parámetros en si mismos. Este punto ha sido eliminado en algunas versiones mas modernas, donde se trabaja con los parámetros en coordenadas naturales.
2. No suelen presentar una velocidad de convergencia elevada. Su evolución depende exclusivamente de los mecanismos de mutación y recombinación de soluciones.

3. Presentan un buen comportamiento en un amplio espectro de problemas.
4. Son complejos de ajustar ya que hay que ajustar en cada problema un número elevado de parámetros en el algoritmo.

La implementación de este algoritmo es una adaptación del software proporcionado por *Jenoptik*, fabricante del *SLM*

### 4.3.1. Funcionamiento general

La estructura de funcionamiento de un *AG* se muestra en la Figura 4.3. Una vez inicializada la población se realiza su evaluación, en la que se estima la salud de los individuos (soluciones) que la componen. Si se ha alcanzado el criterio de convergencia la optimización ha terminado. Si no es así, se realizan las operaciones de mutación, cruce y reproducción de los individuos para conformar la siguiente población, que ha de volver a ser evaluada. El proceso se repite hasta cumplir el criterio de convergencia.

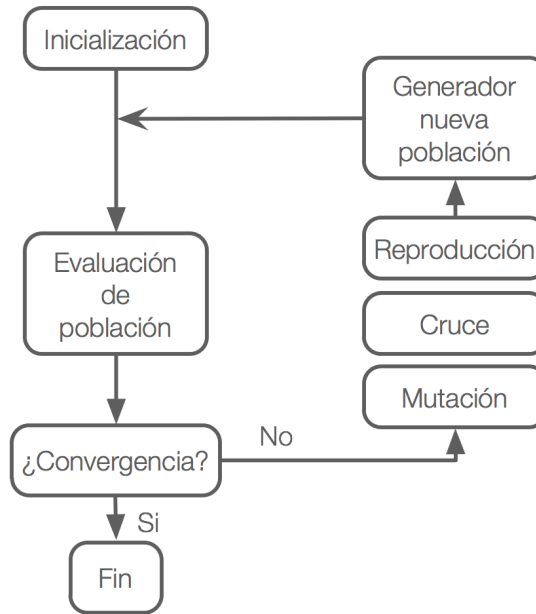


Figura 4.3: Esquema general de funcionamiento de un algoritmos genético.

La población de soluciones en la generación  $g$ ,  $P_{\Phi,g}$  está compuesta por  $Np$  individuos

$$P_{\Phi,g} = (\Phi_i, g), i = 1, \dots, Np \quad (4.6)$$

donde cada uno de los individuos es una posible solución y estará compuesto por los  $D$  parámetros que representan la fase

$$\Phi_{i,g} = (\phi_{j,i,g}), j = 1, \dots, D_{\text{nodos}} \quad (4.7)$$

Es posible trabajar directamente con estos parámetros, y aplicar sobre ellos los mecanismos de mutación y recombinación. En esta tesis se ha utilizado la implementación clásica, en la que cada uno de los parámetros estará codificado mediante  $k$  bits.

$$\phi_{j,i,g} = \phi_{p,j,i,g} \quad p = 1, \dots, k \quad (4.8)$$

Cada uno de los individuos  $\Phi_{i,g}$  que componen la población estará, por tanto, compuesto por una cadena de bits, 1's y 0's, de longitud  $D*k$  denominada genotipo. La expresión cómo parámetros en coordenadas del sistema de esta cadena es su fenotipo. Durante la evolución de la población no se trabaja directamente con los parámetros, sino con la representación de la misma mediante esta cadena binaria. Aunque en la práctica muchos de los mecanismos de mutación utilizados y el procedimiento de cruce se efectúa a nivel de parámetro

En primer lugar se realiza una medición de la salud de los individuos,  $S(\Phi_i)$ , mediante su evaluación sobre el problema. Para la evolución entre una generación,  $P_{\Phi,g}$ , y la siguiente,  $P_{\Phi,g+1}$ , se utilizan los procesos de **selección**, **cruce** y **mutación**. La evolución de la población exclusivamente mediante los mecanismos de mutación aleatoria y cruce aleatorio, junto con la codificación mediante bits de la solución, son las características que distinguen a los *AGs* de las Estrategias evolutivas.

### Selección

En primer lugar, la población es sometida al proceso de **selección**, en el que los individuos que van a combinarse (reproducirse) para dar lugar a la generación  $g + 1$  son elegidos. Existen múltiples variantes a la hora de realizar la selección, en nuestro caso los criterios utilizados son:

- *Elitismo*: Un número determinado de los individuos con mejor *salud* formaran parte de la siguiente generación sin someterse a la reproducción. Este es el único esquema que garantiza la convergencia del algoritmo [64].
- *Selección proporcional a la salud de los individuos*: Para el resto de soluciones ( $Np - elite$ ) que formaran la generación  $g + 1$  hay que seleccionar a sus padres, se utilizan dos individuos de la generación  $g$  para generar un individuo en la generación  $g + 1$ . Los individuos con mejor salud tienen mayor probabilidad de ser seleccionados para la reproducción, pero no la certeza de ser elegidos. La probabilidad de selección de un individuo,  $p(\Phi_i)$ , será

$$p(\Phi_i) = \frac{S(\Phi_i)}{\sum_{j=1}^{Np} S(\Phi_j)} \quad (4.9)$$



### Cruce

Una vez determinados los individuos que va reproducirse, el operador de **cruce** es el encargado de combinar sus genes. En este proceso se intercambian segmentos de genes entre los *padres*, de forma análoga a cómo se realiza en la naturaleza. Se utilizan dos puntos de cruce escogidos al azar con probabilidad uniforme. El cruce se realiza a nivel de parámetro, combinando los segmentos entre los individuos mediante una mascara de combinación creada con una cierta probabilidad de cruce  $pc$ .

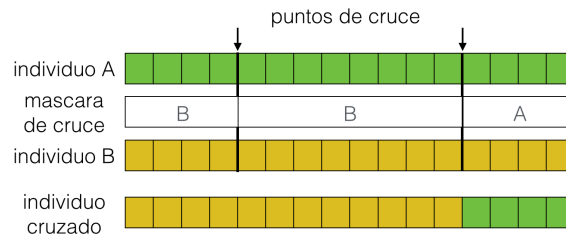


Figura 4.4: Operación de cruce a nivel de parámetro entre dos individuos A y B. Utilizando dos puntos de cruce y una mascara de cruce se selecciona de que padre va a heredar el hijo los parámetros

### Mutación

Si sólo utilizásemos el cruce entre individuos, el espacio de exploración estaría determinado exclusivamente por la combinatoria en base a la población inicial. Una vez obtenidos los miembros constituyentes de la generación  $g+1$ , la **mutación** proporciona a los individuos generados la variabilidad necesaria para una correcta exploración del espacio de soluciones, siendo aplicada a los individuos que no provienen de la selección de élite.

Cada uno de los individuos generados será mutado con una determinada probabilidad de mutación,  $pm$ . En este caso se utilizan 7 operadores de mutación diferentes que se selecciona con probabilidad uniforme sobre los individuos que conforman una generación:

1. Variación gaussiana a nivel de parámetro: Cada uno de los parámetros sufre una variación en torno a si mismos con una distribución gaussiana de desviación standard aleatoria
2. Se realiza un suavizado del individuo mediante un promediado con una copia de si mismo que a sufrido una rotación con longitud de un parámetro.
3. Adición o sustracción de un *offset* con valor 1, se aplica con probabilidad uniforme a nivel de parámetro.
4. Copia de parámetros a sus vecinos, aplicada con probabilidad uniforme.

5. *Bit-flip*. Cambio de 1 por 0 y viceversa se aplica a nivel de bit con probabilidad uniforme.
6. Rotación de longitud aleatoria. Se aplica a nivel de parámetro.
7. Espejo. Se generan individuos simétricos con elección aleatoria del segmento que da lugar a la simetría (se divide en dos y se reflejan los valores de una de los segmentos).

## 4.4. Differential Evolution

Las estrategias evolutivas (*EEs*) presentan un buen desarrollo en este tipo de problemas. Podemos encontrarlas aplicadas a problemas cómo la optimización de generación de segundo armónico [3], alineación molecular [27] o la compresión de pulsos [65], ejemplos en los que se utilizan las estrategias *Covariance Matrix Adaptation (CMA-ES* y *Derandomized Adaptation (DR2)*. El número de evaluaciones necesarias para la convergencia en los ejemplos citados se cifran en miles. Nuestro objetivo último es poder aplicar la conformación adaptativa de pulsos sobre experimentos con recursos limitados (p.e. superficie de muestra), por lo que estos tiempos de convergencia son inviables.

En la búsqueda de un algoritmo que ofreciera mejores tiempos de convergencia optamos por la aplicación de una estrategia alternativa, Differential Evolution (*DE*) [66]. Se ha mostrado mas eficiente que otros tipos de algoritmos evolutivos [67] [31] y se decidió evaluarlo cómo algoritmo alternativo de optimización.

*Differential Evolution* es un método de optimización global sobre espacios continuos diseñado para cumplir los requerimientos:

1. Habilidad para manejar funciones de costo no diferenciable, no-lineales y multimodales. *DE* es un método estocástico de búsqueda directo, así que puede ser aplicado en entornos donde la búsqueda se hace en un experimento real y no sólo en una simulación
2. *DE* es paralelizable, lo cual le permite trabajar con funciones de coste de alto requerimiento computacional. cómo hemos visto en nuestro caso esto no supone una ventaja añadida, dado que nuestro sistema experimental no es paralelizable.
3. Facilidad de sintonización, al disponer de pocos parámetro de control, robustos y de fácil elección. *DE* utiliza la información de su propia población para explorar el espacio de búsqueda. Este esquema de auto-organización se realiza tomando el vector diferencia de dos vectores escogidos al azar en su población para perturbar a otro vector existente. Todos los elementos de la población son perturbados.

Esta es una diferencia importante frente a las *EEs* donde las perturbaciones están predeterminadas por una probabilidad de perturbación

4. Posee buenas propiedades de convergencia. Presenta una velocidad de convergencia consistente al mínimo global en diferentes lanzamientos.

#### 4.4.1. Funcionamiento general

$DE^{43}$  utiliza dos poblaciones de individuos-vectores (soluciones), ambas con un tamaño de  $Np$  individuos (soluciones), que permanece constante durante toda la optimización de los  $D$  parámetros.

Nuestra población generacional será

$$P_{\mathbf{x},g} = (\mathbf{X}_{i,g}), i = 1, \dots, Np, g = 1, \dots, g_{max} \quad (4.10)$$

compuesta de individuos :

$$\mathbf{X}_{i,g} = (x_{j,i,g}) = (\phi_{j,i,g}), j = 1, \dots, D_{nodos} \quad (4.11)$$

siendo  $g$  el índice de la generación a la que pertenece la población,  $i$  el índice del individuo dentro de la población y  $j$  el parámetro dentro de la población.

En la primera población,  $P_{\mathbf{x},1}$  la inicialización de los individuos es abordada mediante un muestreo aleatorio en el espacio sujeto a optimización. La población debe cubrir todo el espacio de soluciones con una probabilidad uniforme. En nuestro caso cada  $(\phi_{j,i,g})$  adoptará valores  $\in [0, 2\pi]$ , aunque en caso de tener soluciones preliminares se podría generar una población como desviaciones sobre esa solución aproximada inicial.

##### Mutación

En cada generación se obtiene una población  $P_{\mathbf{v},x}$  de prueba intermedia de  $Np$  vectores mutados  $\mathbf{v}_{i,g}$

$$P_{\mathbf{v},g} = (\mathbf{V}_{i,g}), i = 1, \dots, Np, g = 0, 1, \dots, g_{max} \quad (4.12)$$

Siendo cada individuo:

$$\mathbf{V}_{i,g} = (v_{j,i,g}) = (\phi_{j,i,g}), j = 1, \dots, D_{nodos} \quad (4.13)$$

Estos vectores mutados  $\mathbf{v}_{i,g}$  se generan mediante las operaciones de mutación y cruce de individuos y son los encargados de explorar el espacio.

---

<sup>43</sup>Descripción basada en *Differential Evolution, A Practical Approach to Global Optimization* [68]

En la operación de **Mutación** cada uno de los individuos se genera mediante la mutación diferencial que añade un vector diferencia de dos vectores escalados por un factor  $F$  a un tercer vector para formar el vector mutado  $\mathbf{v}_{i,g}$

$$\mathbf{v}_{i,g} = \mathbf{x}_{r0,g} + F(\mathbf{x}_{r1,g} - \mathbf{x}_{r2,g}) \quad (4.14)$$

El factor de escala  $F \in (0, 1)$  es un entero real positivo. Si bien no existe un límite superior, su valor óptimo no suele ser mayor a 1. Los índices de los vectores involucrados en la mutación  $r_1, r_2, r_3 \in [0..N_p]$  son escogidos aleatoriamente con probabilidad uniforme para cada una de las mutaciones, con la única condición de  $r_n \neq i, r_1 \neq r_2 \neq r_3$ . Al vector  $\mathbf{x}_{r0,g}$  se le denomina donador o vector base y a  $F(\mathbf{x}_{r1,g} - \mathbf{x}_{r2,g})$  perturbación. El factor de ponderación  $F$  nos proporciona el tamaño del paso de búsqueda  $\sigma$ , que gracias a los vectores diferencia será dinámico. En la Figura 4.5 tenemos una descripción visual de este proceso, en el que vemos los vectores diferencia posibles sobre una población de 9 individuos. Estos vectores diferencia poseen una distribución que se escala por el factor  $F$ . Una de estas diferencias escaladas se añade al donador para formar el individuo mutado.

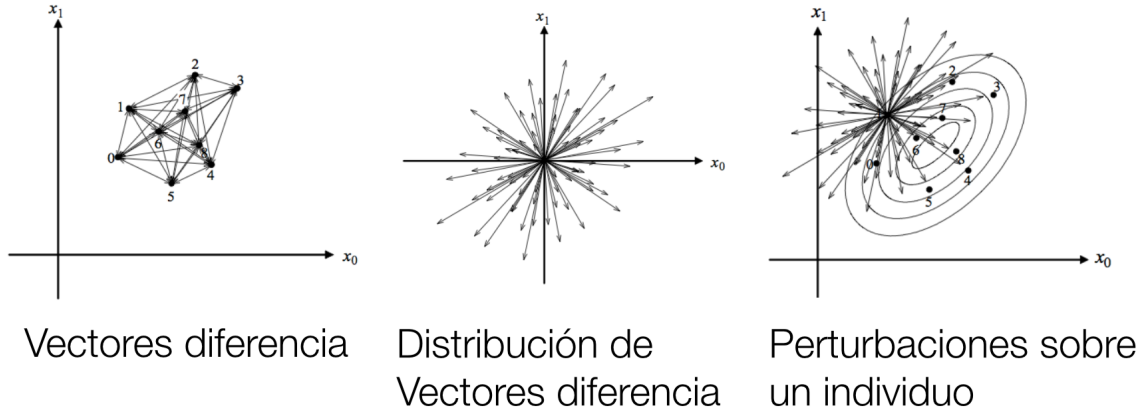


Figura 4.5: Vectores diferencia posibles sobre una población de 9 individuos. Estos conforman las perturbaciones posibles aplicables a cada individuo, ponderadas por el factor  $F$

### Cruce

La estrategia de mutación diferencial se complementa con la aplicación de un operador de **cruce** uniforme, comúnmente denominado recombinación discreta, en la que se genera la población de prueba,  $P_{u,g}$  utilizando las poblaciones mutada  $P_{v,g}$  y original  $P_{x,g}$ ,

$$P_{\mathbf{u},g} = (\mathbf{U}_{i,g}), i = 1, \dots, Np, g = 0, 1, \dots, g_{max} \quad (4.15)$$

donde cada individuo de prueba tiene la forma:

$$\mathbf{U}_{i,g} = (u_{j,i,g}), j = 1, \dots, D_{\text{nodos}} \quad (4.16)$$

y es formado siguiendo la regla

$$\mathbf{U}_{i,g} = u_{j,i,g} = \begin{cases} v_{j,i,g} & \text{si } (rand_j(0, 1) \leq C \text{ o } j = j_{\text{rand}}) \\ x_{j,i,g} & \text{en cualquier otro caso} \end{cases} \quad (4.17)$$

siendo  $C \in [0, 1]$  la probabilidad de cruce, que controla qué fracción de los vectores es copiado del elemento mutado, y que es constante a lo largo de todo el proceso.  $j_{\text{rand}} \in [1, D]$  nos asegura que al menos uno de los componentes del vector es alterado y asegura una diversidad mínima en la población de prueba  $P_{u,g}$ .

#### **Cruce**

Finalmente se produce el proceso de selección, en el que cada uno de los vectores de prueba que componen  $P_{u,g}$  se enfrentan a los de la generación actual,  $P_{x,g}$ , para conformar la siguiente generación,  $P_{x,g+1}$ , siguiendo el siguiente esquema

$$\mathbf{x}_{i,g+1} = \begin{cases} \mathbf{u}_{i,g} & \text{si } f(\mathbf{u}_{i,g}) \leq f(\mathbf{x}_{i,g}) \\ \mathbf{x}_{i,g} & \text{en cualquier otro caso} \end{cases} \quad (4.18)$$

siendo  $f(\mathbf{u}_{i,g})$  y  $f(\mathbf{x}_{i,g})$  las evaluaciones de función de costo de los individuos.

El proceso de mutación, cruce y selección se repite indefinidamente hasta que la condición de detención se cumple.

### **4.4.2. Variantes usadas**

Con el fin de acelerar el proceso de optimización hemos empleado dos variantes que mejoran el rendimiento de *DE* sobre nuestro problema. La primera de ellas realiza una mejora sobre la población inicial, la segunda acelera la convergencia en búsquedas locales.

#### **4.4.2.a. Opposite Based Learning**

*Opposite Based Learning* es un método de inicialización de población que mejora la selección de individuos en la generación 0 y que se ha mostrado eficaz en la aplicación de *DE* sobre compresión de pulsos, en láseres amplificadores basados en fibra [26], con un sintetizador de pulsos previo a la etapa de amplificación. Su funcionamiento consiste en generar una población inicial aleatoria y su opuesta, o complementaria, dentro de nuestros límites de búsqueda. A partir de estas dos poblaciones se realiza una evaluación seleccionando a los mejores individuos para conformar la población

inicial. De esta forma se trata de mejorar el punto de partida en la búsqueda. Dada una población inicial

$$P_{\mathbf{x},0} = (\mathbf{X}_{i,0}), i = 0, 1, \dots, Np - 1, g = 0, 1, \dots, g_{max} \quad (4.19)$$

compuesta de individuos :

$$\mathbf{X}_{i,0} = (x_{j,i,0}), j = 0, 1, \dots, D_{nodos} - 1 \quad (4.20)$$

con parámetros  $j$  seleccionados en el intervalo  $I \in [0, 2\pi]$  generamos

$$Popp_{\mathbf{x},o} = (\mathbf{Xopp}_{i,0}), i = 0, 1, \dots, Np - 1, g = 0, 1, \dots, g_{max} \quad (4.21)$$

compuesta de individuos :

$$\mathbf{Xopp}_{i,0} = (xopp_{j,i,0}) = 0 + 2\pi - x_{j,i,0}, j = 0, 1, \dots, D_{nodos} - 1 \quad (4.22)$$

Generamos la población inicial escogiendo los mejores individuos de ambas poblaciones

$$\mathbf{x}_{i,0} = \begin{cases} \mathbf{Xopp}_{i,0} & \text{si } f(\mathbf{Xopp}_{i,0}) \leq f(\mathbf{x}_{i,0}) \\ \mathbf{x}_{i,0} & \text{en cualquier otro caso} \end{cases} \quad (4.23)$$

#### 4.4.2.b. Operador de mutación trigonométrico

Hemos implementado un operador de mutación trigonométrico [69] que mejora la velocidad de convergencia del algoritmo en problemas de optimización local. Lo hemos usado ya que las características del espacio de soluciones, que se verán en la descripción del algoritmo propuesto, apartado 4.5, indican que estamos ante un problema optimización local. En simulaciones (no mostradas) se incrementa la velocidad de convergencia en al menos un factor 3. En este tipo de mutación, al igual que en la implementación estándar, se hace uso de tres vectores,  $\mathbf{x}_{r0,g}$ ,  $\mathbf{x}_{r1,g}$ ,  $\mathbf{x}_{r2,g}$ .

El donador es el centro del hipertriángulo formado por los tres vectores seleccionados para formar parte de la mutación, la perturbación final es la suma ponderada de los tres vectores diferenciales.

$$\mathbf{v}_{i,g} = \frac{\mathbf{x}_{r1,g} + \mathbf{x}_{r2,g} + \mathbf{x}_{r3,g}}{3} + \quad (4.24)$$

$$(p2 - p1)(\mathbf{x}_{r1,g} - \mathbf{x}_{r2,g}) + (p3 - p2)(\mathbf{x}_{r2,g} - \mathbf{x}_{r3,g}) + (p1 + p3)(\mathbf{x}_{r3,g} - \mathbf{x}_{r1,g})$$

donde

$$p1 = \frac{|f(\mathbf{x}_{r1,g})|}{p'} \quad (4.25)$$

$$p2 = \frac{|f(\mathbf{x}_{r2,g})|}{p'} \quad (4.26)$$

$$p3 = \frac{|f(\mathbf{x}_{r3,g})|}{p'} \quad (4.27)$$

$$p' = |f(\mathbf{x}_{r1,g})| + |f(\mathbf{x}_{r2,g})| + |f(\mathbf{x}_{r3,g})| \quad (4.28)$$

$$r_n \neq i, r_1 \neq r_2 \neq r_3 \quad (4.29)$$

Aplicamos esta mutación con una probabilidad trigonométrica  $pt = 0,05$  frente a la mutación normal para evitar la hiperconvergencia<sup>44</sup> mejorando la velocidad frente al esquema normal.

## 4.5. Algoritmo propuesto: *MODS*

Uno de los objetivos que nos planteamos al iniciar esta tesis era la exploración de los Algoritmos Evolutivos para poder realizar el ajuste de fase necesario para alcanzar ciertos efectos físicos. Si bien los Algoritmos Evolutivos muestran un buen comportamiento sobre este tipo de problemas [70] [20] [27], alcanzando soluciones de una gran calidad, adolecen de un problema fundamental: son relativamente lentos, necesitando miles de evaluaciones para lograr la convergencia. En los casos en los que el recurso a optimizar es costoso, en algún sentido del termino, disminuir nuestra ventana de consumo de recursos es imperativo. Teniendo en cuenta esta restricción, hemos buscado una alternativa que nos permita realizar una rápida optimización de la fase. El resultado de esta búsqueda es un algoritmo de optimización, al que hemos denominado *Multiple One-Dimensional Search (MODS)*, que presenta un excelente balance entre tiempo de optimización requerido y resultado obtenido.

### 4.5.0.c. Comprensión intuitiva de *MODS*

Con el objetivo de facilitar la comprensión del funcionamiento del algoritmo, nos permitimos dar una breve explicación sobre cómo llegamos a desarrollar *MODS*. Su origen se basa esencialmente en dos ideas.

La primera proviene del análisis hecho por Ofer Shir de unos de los considerados problemas estándar en este tipo de optimización, la generación de segundo armónico (*SHG*). En su artículo *The second Harmonic Generation Case-Study as a Gateway*

<sup>44</sup>Convergencia prematura a un mínimo, esto hace que la probabilidad estar situados en un mínimo local sea alta.

for *ES to Quantum Control Problems* [3] se analiza en profundidad el problema de la optimización de *SHG*.

En esta explicación basta decir que la señal de *SHG* es un proceso no-lineal de segundo orden en el cual la señal medible está definida por

$$shg \propto \int_0^\infty |E(t)|^4 dt \quad (4.30)$$

La señal medida constituye una medida fiable de la compresión temporal de pulso<sup>45</sup>. Cuanto menor es su duración temporal, mayor será el valor de la integral. Si trabajamos con pulsos gaussianos, el valor de duración mas corto posible alcanzable es el asociado al denominado pulso por transformada *FTL*<sup>46</sup>, pulso que podemos obtener con una fase plana ( $\phi_n = 0$ ). En este caso todas las componentes espectrales están en fase y su extensión temporal es, por lo tanto, mínima.

Para hacer una estimación de la complejidad del problema de maximizar la *SHG* en sistemas de conformación de pulsos mediante control de fase, Shir y coautores realizan una serie de simulaciones con el objetivo de evaluar la complejidad matemática de problema. El resultado se muestra en la gráfica 4.6.

En la misma se muestra la curva de mérito obtenida partiendo de un pulso gaussiano y una fase controlada por 100 puntos inicializada en valores aleatorios  $[0, 2\pi)$ , donde los valores de los puntos de control de fase se van colocando, individualmente, a  $0 \text{ rad}$ , hasta conformar un pulso por transformada. Esto se realiza de tres formas diferentes, indexando de izquierda a derecha, de derecha a izquierda y aleatoriamente sin repetición. Cada una de ellas se realiza 100 veces y el resultado promedio es el mostrado en la Figura 4.6. Sus conclusiones les llevan a abordar el problema utilizando dos estrategias evolutivas, *Derandomized Evolution Strategies* (DES), en concreto **DR2** y **CMA-ES**<sup>47</sup>. Las *DES* combinan la eficiencia de búsqueda de las estrategias evolutivas con el análisis estadístico para estimar la distribución espacial de la población y la posible evolución de la misma.

Podemos observar un hecho interesante en la evolución de estas curvas: *al ir situar cada uno de los valores de fase en el valor óptimo, el incremento de la señal es positivo, independientemente del orden que escojamos para poner dichos valores a cero*. Cada uno de los valores de fase tiene su propia contribución, separable y evaluable, sobre el valor óptimo: su contribución marginal. Este comportamiento, en si mismo, resulta interesante, pero no aporta demasiado a la resolución del problema. Nuestra incógnita es, precisamente, cual es ese valor óptimo en el que se debe situar las fases.

<sup>45</sup>Veremos nuestros experimentos sobre compresión de pulsos en el capítulo 5.3.3, página 122

<sup>46</sup>Fourier Transform Limited

<sup>47</sup>DR2: utiliza información de primer orden  $\mathcal{O}(n)$  CMA (Covariance Matrix Adaptation), utiliza información de segundo orden  $\mathcal{O}(n^2)$  en sus parámetros de optimización, siendo  $n$  la dimensión del espacio de búsqueda



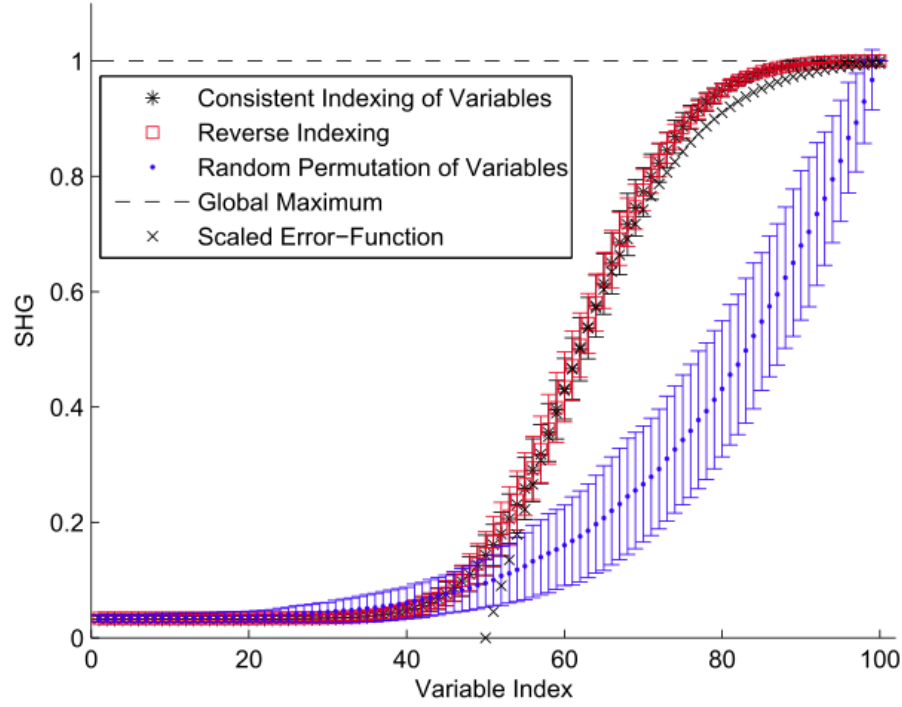


Figura 4.6: Efecto del ajuste marginal de las fases a  $0 \text{ rad}$  para conseguir un pulso por transformada y su efecto en la generación de segundo armónico [3]

El segundo pilar de nuestro algoritmo llegó más adelante y proviene del mundo de la femtoquímica. En *Why do effective quantum controls appear easy to find?* [71], Herschel Rabitz<sup>48</sup> y Tak-San Ho se preguntan porque es aparentemente *tan sencillo* encontrar soluciones a los problemas de control cuántico de procesos y hacen un análisis del espacio de control cuántico (QCL<sup>49</sup>) en términos del campo de control  $E(t)$ .

Se pregunta por qué se encuentran, con relativa facilidad, buenas soluciones utilizando conformación de pulsos con control adaptativo en bucle cerrado en la optimización de compresión temporal de pulsos, generación de armónicos o manipulación de excitación electrónica. A priori un problema con alta dimensionalidad en el espacio de control sobre efectos que presentan no linealidades deberían ofrecer extrema complejidad, máxime dadas las características restrictivas que posee el campo de control,

<sup>48</sup>uno de los padres de la femtoquímica, ha trabajado en el control de dinámicas cuánticas mediante pulsos ultracortos conformados, introduce el concepto de Quantum Control Landscapes en el que nos basamos

<sup>49</sup>*Quantum Control Landscape*

cómo estar situado en una frecuencia central determinada con un ancho de banda limitado. Sus conclusiones son sorprendentes a la hora de entender nuestro problema. En resumen, y bajo la premisa de disponer de suficiente control sobre  $E(t)$ , concluyen que en el  $QCL$ :

- No hay falsos sub-óptimos en el espacio de soluciones<sup>50</sup>, todos sus mínimos son mínimos globales.
- Los puntos críticos del espacio de soluciones son puntos de silla
- Los espacios de soluciones son de pendientes suaves y su extremo (óptimo) es plano.
- Debería haber cierto grado de robustez frente al ruido.

Estas conclusiones topológicas son establecidas sobre probabilidades de transición entre estados cuánticos, lo que implica sistemas realmente *pequeños*, conjuntos de átomos o moléculas principalmente. De ser aplicables a la escala en la que se realizan nuestros experimentos nos ofrecen un escenario ideal. Nos encontraríamos ante un gradiente perfecto, en el que todos los mínimos son mínimos globales y que son accesibles desde cualquier punto del espacio de soluciones. Siempre y cuando el control del que disponemos sobre  $E(t)$  sea suficiente.

El pulso  $E(t)$  en si mismo posee ciertas restricciones, cómo su ancho de banda que lo restringe a una duración mínima de  $\approx 100$  fs, y nuestra capacidad de control espectral también posee limitaciones, cómo que cada píxel controla un paquete de longitudes de onda, o la carencia de modulación de amplitud. Asimismo nuestra capacidad de control se ve mermada por el uso de la parametrización por nodos. A pesar de ello veremos cómo tenemos control suficiente, y que podemos utilizar esas premisas topológicas en la búsqueda, tal y cómo se mostrará en la sección de resultados experimentales.

En cualquier caso, el armazón sobre el que construimos nuestro algoritmo es:

- Cada uno de los parámetros de control tiene una contribución marginal evaluable en la solución.
- La topología del espacio de soluciones nos predice que dentro de esa contribución marginal existirán múltiples óptimos que son globales.
- Existe un gradiente monotónico en el espacio de soluciones

---

<sup>50</sup>Landscape

Basandonos en estos puntos aplicamos el paradigma de *divide y vencerás*: Optimizamos de forma marginal cada una de los nodos que conforman la fase, buscando su óptimo, sabiendo que cualquiera que encontremos será válido y, además, la función evaluada<sup>51</sup> es monotóna.

Veamos ahora una descripción un poco mas formal.

#### 4.5.1. Bases formales de *MODS*

*MODS* está basado en tres asunciones fundamentales sobre las condiciones de contorno del problema:

1. Cada uno de los parámetros de nuestro espacio de control puede ser ajustado de forma marginal.( *condición suave*)
2. No existen mínimos locales en el landscape.(*condición dura*)
3. Existen infinitos mínimos globales en el landscape.(*condición dura*)

La primera condición se deriva la relación tiempo-frecuencia que nos ofrece la transformada de Fourier, que, expresada en su forma discreta nos dice

$$\mathbf{X}_\omega = \sum_{t=0}^{N-1} x_t e^{-i2\pi\omega t/N} \quad (4.31)$$

$$x_t = \frac{1}{N} \sum_{\omega=0}^{N-1} \mathbf{X}_\omega e^{-i2\pi\omega t/N} \quad (4.32)$$

en la que se verifica cómo cada una de las componentes temporales de nuestro pulso es una suma lineal de sus componentes espectrales. Las condiciones 2 y 3 las consideramos *duras* ya que suponen una asunción muy fuerte sobre la topología del espacio de soluciones. Se derivan de los estudios relativos al *QCL* realizados principalmente por Herschel Rabitz en sus estudios sobre *Quantum Control Theory* ( *QCT* ) y su aplicación a *Quantum Control Experiments* (*QCE*) [72][71] [73]. Para sintetizar las características topológicas esperadas, estos dos corolarios extraídos de la Tesis de Ofer M. Shir, *Niching in Derandomized Evolution Strategies and its Applications in Quantum Control* [74], consideramos que contienen la información relevante:

- **Corolario 6.1.2** *Quantum Control landscapes have extrema that correspond to perfect control or to no-control. Furthermore, given a controllable quantum system, there is always a trap-free pathway up to the top of the control landscape from any location, allowing the location of the global maximum with first-order (gradient) information.*

---

<sup>51</sup>La evaluación del fenómeno no-lineal a optimizar

- **Corolario 6.1.3** *A general controllable Quantum Control problem has a rich landscape with an infinite number of optimal solutions, corresponding to perfect control. Climbing-up to the top of the landscape reveals control level-sets at every yield value, with manifolds which can be explored with continuous trajectories.*

La posibilidad de realizar el ajuste marginal de los  $D$  parámetros supone una reducción mas en la dimensionalidad sobre el espacio de búsqueda. La presunción teórica de existencia de un sólo óptimo local accesible mediante un camino continuo y sin cambios de signo en el gradiente es una característica topológica extremadamente útil. Además el espacio de búsqueda es circular, los valores que puede adoptar cada una de los nodos de control, están acotados en el rango  $[0, 2\pi)$ . Ahora el espacio de soluciones en el que realizamos la búsqueda se transforma en la forma  $S^{n_{\text{Píxeles}}} \rightarrow S^D \rightarrow DS$ . De  $D$  parámetros a optimizar pasamos a  $D$  búsquedas individuales en las que el espacio de soluciones unidimensional es circular presentando un sólo óptimo. *MODS* esta diseñado para desenvolverse en ese espacio.

Existen elementos experimentales que nos alejan de este ideal, nuestro control sobre  $E(t)$  es limitado, introducimos discontinuidades por la forma de tratar la fase, se producen modulaciones de amplitud que distorsionan el espacio de soluciones y tenemos un ruido en forma de variaciones aleatorias de energía y duración en nuestro pulso.

El funcionamiento general es similar al método de Hooke-Jeeves (*Pattern Search*), pero se diferencian en que *MODS* incorpora las contribuciones de cada parámetro.

### 4.5.2. Descripción del algoritmo

*MODS* utiliza una única solución en la que la fase,  $\Phi_w$  compuesta por  $D$  parámetros, es utilizada como medio de exploración y como elemento de memoria

$$\Phi_w = (\phi_i) \ i = 1, \dots, D \quad (4.33)$$

En la optimización cada uno de los  $D$  nodos que conforman la fase es optimizado de forma marginal y su valor óptimo es retenido en el vector  $\Phi_w$ , realizando el proceso para cada uno de los  $D$  nodos sin repetición. Al proceso de optimización de todos los nodos lo denominamos *Barrido*,  $B$ . La expresión algorítmica básica de *MODS* se presenta en el Algoritmo 1

Hablamos de optimización marginal y no de optimización independiente de los  $D$  nodos porque todos los elementos que conforman la fase se encuentran acoplados en la solución temporal. El efecto de la variación de un nodo es dependiente del valor del resto de la fase, encontrándose acoplados en el tiempo tal y como nos muestra la expresión 4.32.

Para completar la descripción del algoritmo 1 hay tres aspectos por definir:

---

**Algoritmo 1** Secuencia básica de *MODS*

---

```

for  $b = 1$  to  $B$  do
  for cada D nodo do
    Obtener el valor de fase del nodo que optimice el observable
    Incorporar el valor de fase obtenida en  $\Phi_w$ 
  end for
end for

```

---

- ¿Cómo se realizan las búsquedas individuales?
- ¿Cómo se inicializa la fase?
- ¿Cómo se realiza el barrido de los nodos?

Se responderá a estas preguntas en los siguientes apartados.

**4.5.2.a. Búsquedas individuales**

Se ha logrado reducir el problema a su mínima expresión, una búsqueda unidimensional en la que usar un método de gradiente parece la opción natural. No obstante la estimación de gradiente en señales ruidosas no es trivial, las diferencias finitas no son fiables. En nuestro caso las oscilaciones de potencia y temporales del pulso laser son una barrera infranqueable desde el punto de vista experimental. Mediante una modificación interna del amplificador sería posible mejorar este ruido [42], pero está fuera de nuestro alcance. El mismo grupo de investigación<sup>52</sup> nos muestra un ejemplo de aplicación de un seguidor de gradiente [23] sobre generación de segundo armónico, que consiguen mediante una novedosa determinación estadística de gradiente. En nuestro caso la estimación de gradiente queda descartada.

En nuestro sistema experimental las fuentes de fluctuación de la señal mas importantes son:

- El láser posee una fluctuación de energía pulso a pulso de  $\approx 5\%$  ver Figura 5.2, página 88. Al ser el objeto de la optimización efectos no-lineales, esta banda se incrementa notablemente.
- Como se puede observar en la Figura 5.2, el láser presenta también una fluctuación de energía a medio plazo de un 10-15 %.
- Determinados efectos a optimizar, cómo la absorción a dos fotones<sup>53</sup>, presentan una respuesta probabilística.

---

<sup>52</sup>Y me inclino a pensar que gracias a estas reducciones del ruido experiental

<sup>53</sup>Capítulo 5.3

Ademas existen fuentes de distorsión de la topología del espacio de soluciones, esto es, variaciones del efecto no directamente relacionadas con la conformación temporal que impone la fase, que son especialmente críticas para *MODS*:

- Existen diversas fuentes de modulación de amplitud no deseadas, fenómenos difractivos en el *SLM* o la existencia de filtros de polarización no controlados en el camino del pulso. El espectro de salida del sintetizador de pulsos posee componentes verticales de polarización dependientes de la fase introducida, que se verán mas o menos atenuadas en estos filtros.
- El uso de una parametrización con nodos, unido al uso del enrollado de fases, genera discontinuidades en la transición de las formas temporales obtenidas.

Estas fluctuaciones en la señal y los efectos de la perturbación sobre el espacio se verán con detalle en el capítulo 5.1.3.

Dadas estas limitaciones se ha basado el procedimiento de optimización individual en el muestreo selectivo de valores de costo<sup>54</sup> para puntos de fase discretos con una comparación ordinal [75] de las muestras. Dada la asunción topológica, a partir del resultado del muestreo, se realiza una segmentación recurrente del espacio de búsqueda, para obtener una acotación del área de fase donde reside la mejor función de coste accesible.

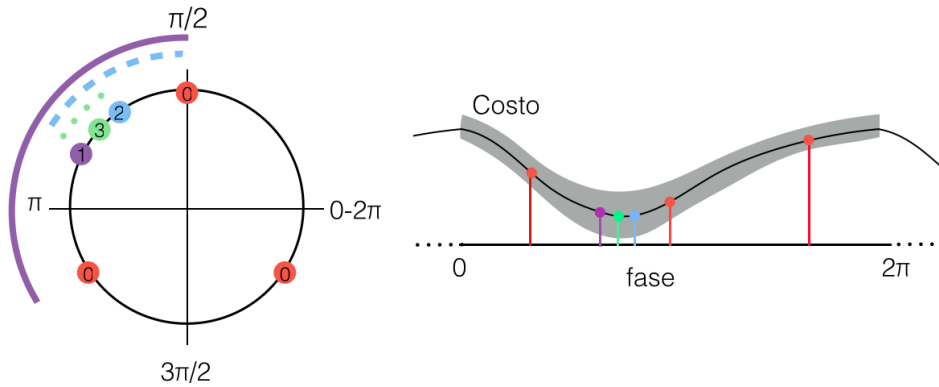


Figura 4.7: Secuencia de pasos en la optimización de un nodo. Representación en el plano de polar (izquierda) y cartesiana (derecha). En la representación cartesiana se muestra una posible curva de valores de costo, señalando en gris la zona de incertidumbre debida al ruido.

Se puede ver gráficamente el proceso de búsqueda en la Figura 4.7, en la que se muestra la misma búsqueda representada en el plano polar y en un plano cartesiano,

<sup>54</sup>En la explicación se utilizará costo para referirnos al observable

en este último se dibuja una posible curva de costo que cumple con las características esperadas: es suave, continua, posee un solo mínimo y es circular. El área gris representa una posible incertidumbre en debida al ruido. La búsqueda comienza con un muestreo inicial uniforme a lo largo de todo el espacio, puntos rojos. Este primer muestreo triseciona el espacio y nos permite elegir uno de los segmentos. Muestreos sucesivos nos permiten realizar bisecciones dentro de este segmento acotando el área de residencia del óptimo. De esta forma conseguimos la máxima separación posible entre los puntos de muestreo a lo largo de todo el espacio. Esto nos asegura el máximo contraste posible entre los valores adquiridos de costo y ,por lo tanto, mejora nuestra detección frente a la banda de ruido.

Su expresión en pseudocódigo la vemos en el Algoritmo 2

---

**Algoritmo 2** Estimación del valor del nodo  $\phi_i$ 


---

```

 $\sigma \leftarrow \frac{2\pi}{32^s}$ 
Las variables  $trial_{A,B,C}$  almacenan el valor de costo así cómo la fase asociada.
 $trial_A \leftarrow C[\Phi_w \mid \phi_i = \phi_i]$ 
 $trial_B \leftarrow C[\Phi_w \mid \phi_i = \phi_i + \sigma]$ 
 $trial_C \leftarrow C[\Phi_w \mid \phi_i = \phi_i - \sigma]$ 
for  $s = 1$  to  $S$  do
     $trial_A, trial_B \leftarrow dosMejoresResultados[A, B, C]$ 
     $\gamma = f[A, B]$  ▷ Obtenemos el ángulo de prueba siguiente
     $trial_C \leftarrow C[\Phi_w \mid \phi_i = \gamma]$ 
end for
 $\phi_i = mejor[trial_A, trial_B, trial_C]$ 

```

---

La realización de un muestreo selectivo con descarte de áreas nos permite acotar el área de búsqueda, sin la necesidad de una estimación de gradiente. De forma sistemática la búsqueda puede expresarse mediante los siguientes pasos

**Paso 0: Muestreo inicial y determinación de segmento objetivo** El proceso comienza tomando tres medidas equiespaciadas en los valores de fase posibles, siendo una de ellas la correspondiente al valor inicial del nodo, definiendo tres segmentos en el área de búsqueda. A partir del segundo nodo evaluado solo es necesario realizar dos medidas, la correspondiente a la posición inicial se hereda de la evaluación del nodo anterior. La distancia de salto,  $\sigma$ , estará determinada por el número de Barrido que estemos realizando, modificando el área de muestreo inicial que se utiliza en cada pasada, en nuestro caso hemos utilizado:

$$\sigma = \frac{2\pi}{3 \cdot 2^{B-1}} ; B = 1..nBarridos \quad (4.34)$$

que ajusta  $\sigma$  en el barrido  $B + 1$  al tamaño del segmento en  $B$ .

**Paso 1: Determinación del segmento objetivo** A partir de los tres valores del muestreo inicial elegimos el segmento de fases donde se estima que reside el óptimo, seleccionando el contenido entre los dos mejores puntos de costo obtenidos. Este criterio puede parecer burdo. De hecho, lo es, pero la presunción de existencia de una función suave y, sobre todo, la baja fiabilidad del valor obtenido debida al ruido, no permiten aplicar estimadores más avanzados. Si bien este criterio no es universal, en simulaciones con ausencia de ruido se muestra efectivo.

**Paso 2: Refinamiento de búsqueda** Una vez seleccionado el segmento de búsqueda, tomamos una nueva muestra en su interior. Para determinar la fase de muestreo  $\gamma$  consideramos cada punto de prueba como un vector cuyo módulo es la medida adquirida, y su ángulo la fase utilizada. Estimamos  $\gamma$  a partir de la suma vectorial<sup>55</sup> de las dos medidas que lo acotan. De esta forma, el punto de búsqueda es estimado dinámicamente a partir de la ponderación de las muestras anteriores. Cada una de estas nuevas adquisiciones de costo las denominamos *Salto*,  $S$ . Una vez adquirido el valor de costo de este nuevo punto volvemos al paso uno, disponiendo nuevamente de tres puntos de decisión para la segmentación del espacio, reduciendo el área de búsqueda en cada  $S$ . Una vez realizados todos los  $S$  determinados el mejor valor de fase del nodo en evaluación se incorpora a  $\Phi_w$  y se continua con siguiente nodo en el barrido de optimización.

Cada evaluación de nodos hereda un valor de la evaluación anterior que formará parte de la evaluación inicial (paso 0), por lo que en cada uno de los barridos se realizan  $(D(S+2)+1)$  evaluaciones, pudiendo llegar a acotar el área de residencia de la fase óptima del nodo en un entorno de  $2\pi/(3 \cdot 2^{B-1} \cdot 2^{S-1})$  radianes (suponiendo que *gamma* bisecte el segmento en el que se evalúa).

La heurística de selección de rango de existencia del óptimo puede hacer que el ajuste de fase sea erróneo en alguna ocasión. Incluso sin la presencia de ruido es un modelo de predicción que tiene fallos. Este error cometido en realidad no es demasiado perjudicial. Una de nuestras hipótesis de partida nos dice que la topología del espacio sigue comportandose igual sea cual sea el punto en el que nos encontremos. El error producido en el ajuste de un nodo puede afectar al valor final de la convergencia alcanzable, pero al utilizar búsqueda marginal, no compromete el proceso de optimización. De esta forma conseguimos mantener bajo el número de evaluaciones necesarias y tener un tiempo de optimización reducido.

Finalmente, el ajuste y posterior retención en  $\Phi_w$  de cada uno de los ajustes individuales nos proporciona cierta ventaja frente al ruido debido a las fluctuaciones de energía del laser a medio plazo, ya que las referencias de comparación son temporalmente locales en el entorno de  $S+2$  evaluaciones.

---

<sup>55</sup> Al efectuar esta operación debemos tener en cuenta si estamos trabajando con costo o mérito



#### 4.5.2.b. Elección del punto de partida. Fase inicial

La elección del punto inicial de búsqueda es fundamental puesto que, en general, marca el entorno en el que se va a realizar la exploración. Esto puede ser especialmente crítico en el caso de *MODS*, en el que la búsqueda se realiza mediante variaciones sobre una única solución. Una de las características esperadas del espacio de soluciones que describen los estudios sobre el *QCL*[72] es que desde cualquier punto del espacio podemos acceder al óptimo, es decir, nuestro punto de partida no es tan relevante. Si bien en los experimentos computacionales realizados este hecho es aparentemente cierto, no ocurre exactamente así en la práctica. Creemos que el motivo es principalmente debido a la modulación de amplitud no deseada que se produce al manipular la fase, como veremos en el capítulo 5.1.3, página 96, sobre las restricciones experimentales. Hemos probado el comportamiento de *MODS* con dos tipos de inicialización de fase:

- **Plana** Todos los nodos poseen el mismo valor,  $\Phi_w = cte$
- **Aleatoria** Inicializamos de forma aleatoria la fase, con acotación en la amplitud que pueden adoptar, es decir, generamos fases aleatorias restringidas entre  $a$  y  $b$  radianes,  $\Phi_w = rnd[a, b]$

#### 4.5.2.c. Tipo de Barrido

Una de las implicaciones de la posibilidad de aplicar optimización marginal es que el orden de optimización de las variables es permutable. La integración temporal de cada componente espectral asociada a un nodo no está sometida a jerarquías de orden, estando su contribución principalmente asociada a la energía espectral que maneja cada nodo. La Figura 4.8 nos muestra la relación espacial que existe entre nodos, pixeles en el SLM y energía espectral asociada. Se ha señalado en gris el área de influencia de uno de los nodos, como se puede apreciar cada nodo solapa su control de la fase con los adyacentes.

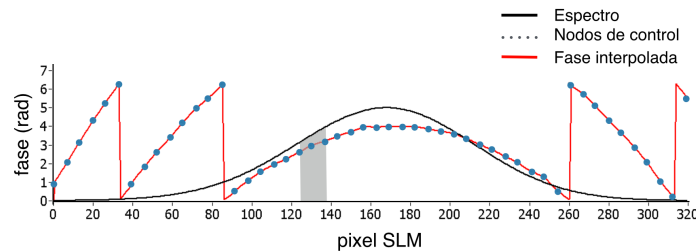


Figura 4.8: Relación espacial entre la amplitud espectral y los nodos de control de la fase. Se muestra una fase cuadrática enrollada.

Hemos explorado tres tipos de recorridos de ajuste de nodos:

- Secuencial: Optimizamos cada uno de los nodos de forma secuencial, de izquierda a derecha (azules a rojos).
- Aleatorio: La selección de los nodos a optimizar es aleatoria sin repetición
- En función de la energía espectral. Optimizamos los nodos desde el de mayor al de menor energía, es decir, desde el centro espectral hacia las colas, alternativamente a izquierda y derecha del nodo central.

En la Figura 4.9 podemos ver la evolución de la función de coste con los diferentes tipos de recorridos. Es un extracto de los datos que veremos en detalle en el capítulo 5.2, en el que el objeto de optimización es una forma de onda arbitraria. En la figura se muestra el resultado promedio (10 lanzamientos), de la evolución de coste durante un barrido (fig.4.9.a), partiendo desde una fase aleatoria, y utilizando los tres tipos de recorrido mencionados. Se ha añadido una representación esquemática del orden de evaluación de los nodos (fig.4.9.b).

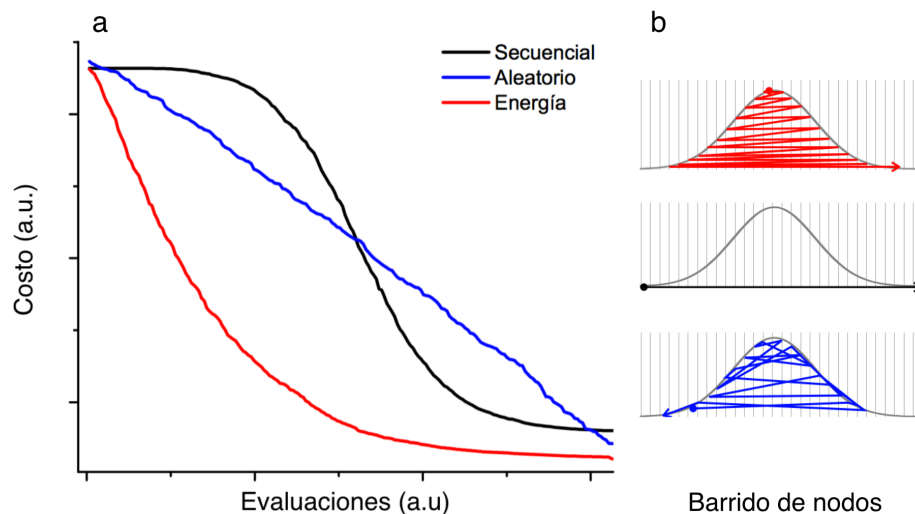


Figura 4.9: Curvas de convergencia típicas según el tipo de Barrido utilizado (a) y representación del recorrido de los nodos (b). El comportamiento depende de la energía asociada a cada nodo. En secuencial (negro) conforma una sigmoide, random (azul) se linealiza y por energía se maximiza la pendiente inicial (rojo).

La mejora de coste por nodo estará asociada a dos factores: Su posición sobre el espacio de soluciones y la energía espectral asociada a cada nodo. El primero determinará la pendiente por la que se puede mover la solución, el segundo cual será la excursión que podrá alcanzar. La contribución de la energía espectral con envolvente gaussiana se ve claramente reflejada en las curvas de los diferentes barridos. El recorrido

secuencial (negro) nos muestra una evolución sigmoideal, con una pendiente máxima en la zona central del recorrido, correspondiente al máximo espectral y pendiente cero al inicio y final de la optimización, correspondiente a las colas espectrales donde no hay energía espectral asociada. En el caso de optimización en función de la energía (curva roja) la curva reproduce el decaimiento exponencial asociado a la energía del espectro gaussiano. Cuando el barrido se hace de forma aleatoria (curva azul) estas contribuciones energéticas se distribuyen uniformemente, de forma que se linealiza la curva de optimización.

Asimismo vemos cómo el resultado de la optimización no es el mismo según el recorrido utilizado. Nuestra hipótesis para explicarlo es que, a medida que nos acercamos al óptimo, el gradiente disminuye. Al mismo tiempo en las colas espectrales la energía disponible es mínima, por lo que resulta mas efectivo empezar la optimización en la zona mas energética del espectro, que nos ofrece mayor gradiente y disponemos de más energía para recorrerlo. Además, el problema del que provienen las curvas, generación de una forma arbitraria, posee mínimos locales ya que la conformación exacta mediante manipulación de fase no existe por regla general. La optimización por energía, en este caso, obtiene mejor resultado.

### 4.5.3. Algoritmo *MODS* completo

Uniendo las etapas de barrido y búsqueda por nodo obtenemos el pseudocódigo del proceso completo, mostrado en el Algoritmo 3. Por simplicidad se ha expresado utilizando recorrido secuencial de los nodos.

Los elementos que determinan su funcionamiento y el comportamiento asociado son:

- **Número de nodos,  $D$ .** Determina la resolución en el ajuste de la fase, y también la sensibilidad y relación señal/ruido (S/N) que necesitamos en nuestro sistema experimental. Un mayor número de nodos implicara una menor energía asociada a cada nodo y por lo tanto el efecto de la exploración por nodo puede no ser detectado, o quedar por debajo de la banda de ruido.
- **Inicialización de la fase.** Determina el punto de partida de la búsqueda. Utilizaremos dos tipos de inicializaciones, fase plana ( $p$ ), donde todos los nodos tienen el mismo valor inicial, o fase aleatoria ( $r$ ) donde los nodos se inicializan con sus valores aleatorios acotados entre los límites  $[a,b]$  radianes.
- **$B$ , Barrido.** Determina el número de veces que se optimizan los  $D$  parámetros o nodos. La aproximación al óptimo es gradual, en cada barrido se logra un refinamiento de la búsqueda mediante una revaluación de la posición de fase que determina cada nodo. Por regla general lograr una buena convergencia, o

**Algoritmo 3** *MODS*, barrido secuencial

---

```

establecer vector de recorrido P
Las variables  $trial_{A,B,C}$  almacenan el valor de costo así cómo la fase asociada.
for  $b = 1$  to  $B$  do
   $\sigma \leftarrow \frac{2\pi}{32^b}$ 
   $trial_A \leftarrow C[\phi_w]$  ▷ Evaluación inicial de la fase para triseccion
  for  $n = 1$  to  $Dnodos$  do ▷ Optimizacion de cada nodo
     $trial_B \leftarrow C[\Phi_w \mid \phi_i = \phi_i + \sigma]$ 
     $trial_C \leftarrow C[\Phi_w \mid \phi_i = \phi_i - \sigma]$ 
    for  $s = 1$  to  $S$  do
       $A, B \leftarrow dosMejoresResultados[trial_A, trial_B, trial_C]$ 
       $\gamma = f[A, B]$  ▷ Obtencion del ángulo de prueba siguiente
       $trial_C \leftarrow C[\Phi_w \mid \phi_i = \gamma]$ 
    end for
     $\phi_i, trial_a = mejor[trial_A, trial_B, trial_C]$ 
  end for
end for

```

---

un buen posicionamiento de la mayoría de los nodos no es viable en sólo 1 barrido. Esto es debido a que la capacidad de mejora por nodo depende de la conformación global de la fase tanto cómo de la posible contribución del propio nodo en evaluación.

- **Tipo de Barrido.** Establece el orden en el que se realiza la optimización de los  $D$  nodos. Su comportamiento respecto a la capacidad de convergencia en simulaciones es muy parecido. Disponemos de tres tipos diferentes: secuencial ( $s$ ), por energía ( $e$ ) y aleatorio ( $a$ ).
- **$S$ , Salto.** Saltos de fase que se realizan en la búsqueda del optimo en cada  $D$  parámetro. Determina la resolución del ajuste de fase que conseguimos dentro de cada ajuste de nodo. Aun no estando expresado en el algoritmo 3, en la práctica se ha implementado la posibilidad de usar un  $S$  diferente para el primer Barrido que el que se usa en el resto.
- **$\sigma$ , Step Size.** Determina el tamaño del rango inicial de exploración del valor de nodo para cada Barrido. El  $\sigma$  implementado trisecta el espacio uniformemente el el primer Barrido, en los siguientes se reduce el rango de exploración.
- **$\gamma$ :** Punto de evaluación de refinamiento de búsqueda. Se determina automáticamente a partir de las dos mejores muestras anteriores.

El número de evaluaciones totales requerida en la optimización estará determinado por el número de barridos utilizados, el número de nodos a optimizar y el número de saltos de refinamiento utilizados, siendo (suponiendo un número de saltos igual en cada barrido)

$$Evaluaciones\ Requeridas = B(D(S + 2) + 1)) \quad (4.35)$$

y el ajuste de fase alcanzado

$$Ajuste\ de\ fase = \frac{2\pi}{3 \cdot 2^{B-1} \cdot 2^{S-1}} \quad (4.36)$$

Por lo que tendremos un incremento lineal de los recursos (evaluaciones) requeridos en la optimización con el número de nodos utilizados, disminuyendo logarítmicamente el error de ajuste con el número de saltos. Este incremento lineal del esfuerzo con el número de variables es una clara ventaja frente al comportamiento típico de los algoritmos evolutivos.

A lo largo de los capítulos experimentales se hará referencia a la configuración utilizada en los lanzamientos de *MODS* utilizando una nomenclatura compacta que tendrá la forma *MODS/Nn/Fi/Tb/Nb-Sp-Ss*, donde:

- *Nn*: Número de nodos utilizados.
- *Fi*: Fase inicial de partida, podrá ser plana (*p*) o aleatoria (*a*), en cuyo caso se indicará la distribución aleatoria utilizada.
- *Tb*: Tipo de barrido, secuencial (*s*), por energía (*e*) y aleatorio (*a*).
- *Nb*: Número de barridos utilizados.
- *Sp*: Número de saltos utilizados durante el primer barrido.
- *Ss*: Número de saltos utilizados en barridos sucesivos.

Por ejemplo, *MODS/50/p/s/2-2-3* representa: *MODS* utilizando 50 nodos, partiendo de fase plana, con recorrido secuencial, dos barridos con dos saltos de búsqueda en el primero y 3 en el segundo.

En determinadas ocasiones no se respetará esta nomenclatura por mejorar la fluidez del texto.

#### 4.5.4. Ilustración de funcionamiento

Para tener una visión de qué ocurre durante el proceso de optimización de la fase resulta revelador observar cómo se comporta la solución ensayada,  $|E(t)|$ , a lo largo de una optimización. El experimento que se analiza es una simulación de optimización de *SHG*. La señal de *SHG* es máxima para un pulso gaussiano por transformada [76]. Se utiliza como valor de *mérito* el observable  $\propto \int |E(t)|^4 dt$ .

En la Figura 4.10 se muestra el esquema utilizado en la simulación. Las fases generadas por *MODS*,  $\phi_{MODS}$  se añaden a un espectro gaussiano con envolvente  $A(\omega)$  que posee una fase  $\phi_{residual}$ . En la Figura 4.11 podemos ver  $A(\omega)$  (negro) y  $\phi_{residual}$  (gris). Esta fase residual cuadrática da lugar a un pulso temporalmente expandido. El objetivo de *MODS* es encontrar la fase que es necesario añadir<sup>56</sup> a la fase residual para maximizar el observable.

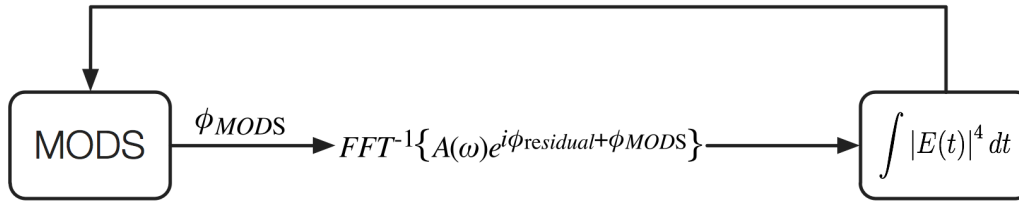


Figura 4.10: Simulación de la optimización de *SHG*. La fase generada por *MODS* se añade a un espectro gaussiano que posee cierta fase residual, el objetivo de la optimización es obtener la fase que maximice el valor del observable  $\propto \int |e(t)|^4 dt$

Se utiliza *MODS/100/p/s/2-3-2*, optimizando 100 parámetros de control, iniciando desde una fase plana, de forma secuencial, utilizando 2 barridos con tres saltos de ajuste en el primero (501 evaluaciones) y dos en el segundo (400 evaluaciones). El proceso total de optimización invierte 901 evaluaciones.

La solución de fase de conformación alcanzada por *MODS* se puede ver en la Figura 4.11 en rojo, además están representadas  $A(\omega)$  (negro),  $\phi_{residual}$  (gris) y la fase final resultante,  $\phi_{residual} + \phi_{MODS}$  (azul). Si observamos la fase de conformación vemos que es igual a la fase residual del pulso, pero con curvatura contraria. Al trabajar sobre el rango  $[0, 2\pi)$  radianes la fase obtenida está enrollada. En la Figura 4.11.b se ha realizado una ampliación para poder apreciar mejor los detalles. Se aprecian ligeros errores de ajuste en ciertos puntos; los contenidos en la zona más energética del espectro son consecuencia de errores cometidos en el modelo de predicción en la segmentación, aunque podrían corregirse al realizar un tercer Barrido de ajuste. En las colas espectrales el error es debido a la velocidad que alcanza la fase nativa: el número de nodos es insuficiente para poder representar los cambios de fase y aparece

<sup>56</sup>Mediante el *SLM* solamente podemos añadir fase sobre el espectro

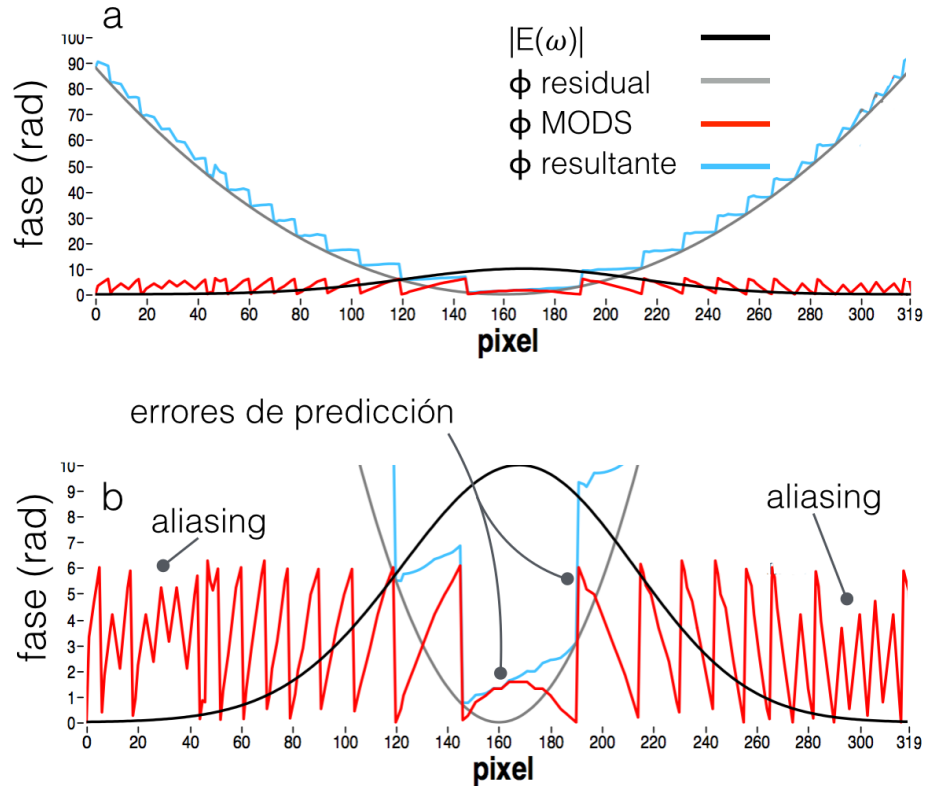


Figura 4.11: Fase obtenida (rojo) para compensar una fase residual cuadrática (gris) sobre un espectro gaussiano (negro) y fase resultante (azul) utilizando 100 nodos de control. En los extremos espectrales, primeros y últimos píxeles, se producen errores debido a la poca energía disponible y al incremento de velocidad de la fase residual: se necesita una mayor densidad de nodos para ajustarla correctamente.

*aliasing*. Al principio del barrido (píxeles 0 al 40) el error es mayor que al final (píxeles 280-320), este comportamiento es debido a la poca energía disponible en ese área que es, precisamente, donde comienza la optimización.

Vemos también cómo la fase final está compuesta por segmentos de fase plana, con una cierta pendiente, segmentada en escalones de  $2\pi$  radianes. Esto es equivalente a tener una fase plana con cierta pendiente. Proporciona un pulso por transformada, pero con un ligero desplazamiento temporal<sup>57</sup>.

En la Figura 4.12.a podemos ver la evolución de  $|E(t)|$  a lo largo de todos los ensayos realizados durante la optimización. Cada línea vertical de la imagen corresponde a una solución temporal ensayada. Se muestra también la curva de optimización de

<sup>57</sup>Una de las multimodalidades del espacio de soluciones que vimos en el apartado 4.2.7, página 55

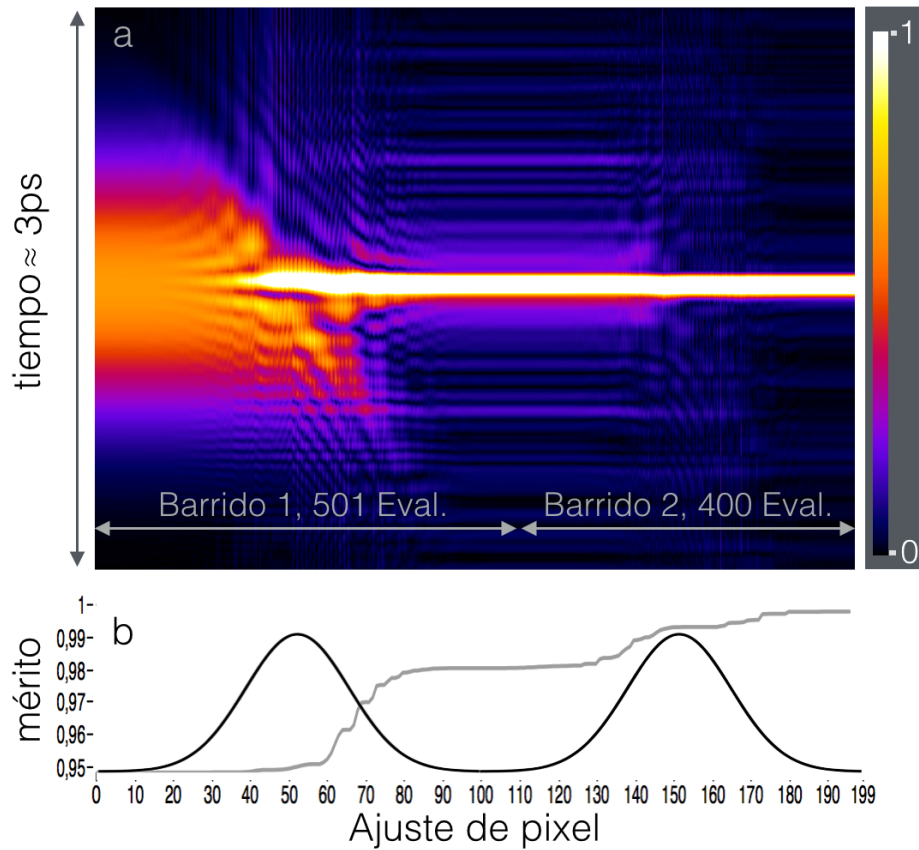


Figura 4.12: Compresión de un pulso expandido mediante la aplicación de una fase cuadrática. Evolución temporal las soluciones ensayadas por *MODS* durante la compresión (a) y evolución de la función de mérito durante dos Barridos de ajuste (b). La escala de color indica la intensidad del campo

mérito (fig.4.12.b) a la que se le ha superpuesto la curva de energía espectral para tener una visión cualitativa de la energía asociada a cada nodo. Vemos la evolución durante el ajuste de los 100 nodos durante los dos barridos realizados. El incremento de la función de mérito está directamente relacionada con la energía que maneja el nodo sujeto a ajuste, conformando una sigmoide. En el primer barrido esta sigmoide no aparece centrada sobre el espectro, ya que al principio del barrido nos encontramos en la cola de la gaussiana, hay poca energía disponible, y estamos muy alejados del objetivo. Esto hace que la pendiente la sigmoide sea menos pronunciada. Cuando un número suficiente de valores de nodos se ajusta la convergencia se acelera. En el segundo ciclo este desequilibrio en las contribuciones ya no es tan acusado y parece estar mas relacionado directamente con la energía. Al mismo tiempo podemos ver (fig.4.12.a) cómo evoluciona la forma temporal, pasando de un pulso expandido al



principio del barrido a un pulso concentrado temporalmente. Se puede ver cómo al realizar la exploración de los valores de los nodos se está haciendo un batido de la energía temporal asociada al nodo, depositándola donde es mas adecuado para la compresión. Este efecto es mas notable donde hay mas energía espectral asociada.

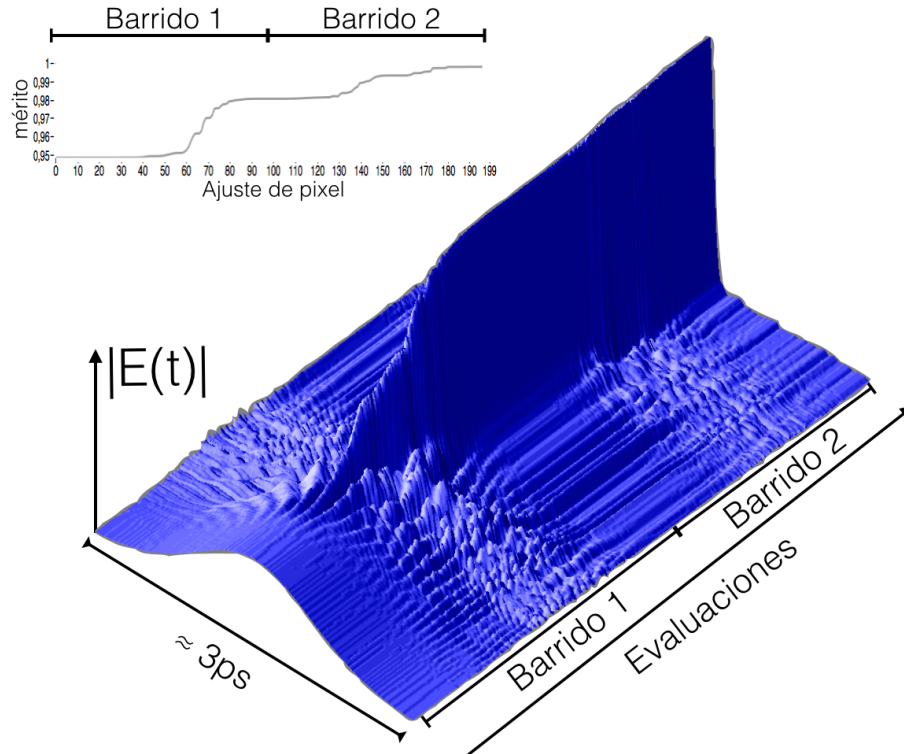


Figura 4.13: Evolución temporal de la solución ensayada por *MODS* en recorrido secuencial con fase inicial plana. Partiendo de un pulso ensanchado por una fase cuadrática, el algoritmo reubica temporalmente la energía espectral disponible. En la zona central del barrido es mas evidente la reubicación temporal de la energía. Se muestra una ventana temporal de 3ps.

La evolución de la conformación temporal se aprecia con mas claridad en la Figura 4.13, donde hemos utilizado un mapa en 3D en vez de utilizar una escala de colores. Se muestra una ventana temporal de  $\approx 3ps$  en la que vemos cómo se comienza con un pulso temporalmente ensanchado y se puede apreciar el efecto que tiene la exploración de fase: Estamos probando diferentes formas temporales, moviendo la cantidad de energía que puede manejar un nodo y ensayando su contribución, tantas veces cómo muestras se toman a lo largo de su ajuste. En las zonas espectralmente poco energéticas (principio y final de los Barridos) correspondiente a las colas espectrales,

vemos cómo este *batido de energía* no tiene prácticamente efecto sobre la forma temporal. A medida que nos acercamos a la zona central de la gaussiana espectral se puede ya apreciar cómo las variaciones producidas son mayores. Por lo tanto, el algoritmo puede tomar decisiones de mas peso sobre la posición de fase que cada nodo debe adoptar para depositar temporalmente la energía del pulso.

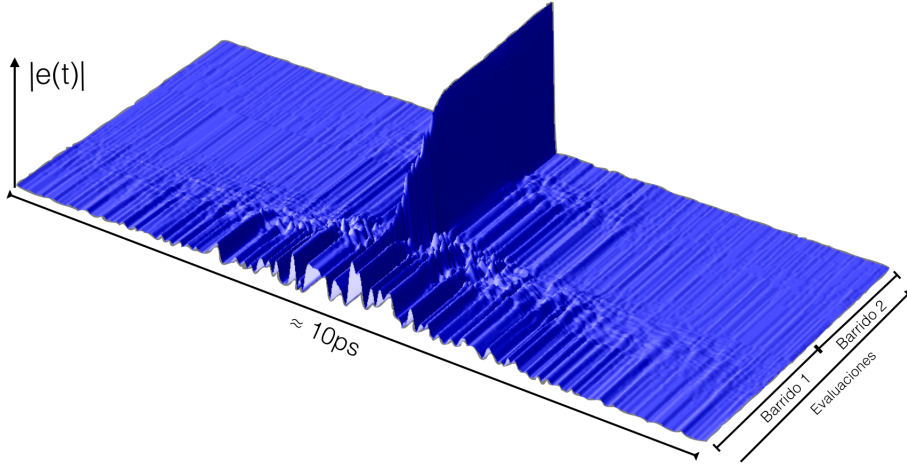


Figura 4.14: Evolución temporal de la solución ensayada por *MODS* en un recorrido secuencial con fase inicial aleatoria.

En la Figura 4.14 se muestra la evolución temporal de la solución ante el mismo problema, con la diferencia de que esta vez la fase de partida del algoritmo,  $\phi_{MODS}$ , es una fase aleatoria uniforme en el rango  $[0, 2\pi)$ . Se ha ampliado el área de visualización temporal llevándolo hasta los  $\approx 10ps$  para mejorar la visualización en la fase inicial. La utilización de una fase aleatoria genera una dispersión no uniforme de la energía del pulso a lo largo del tiempo. La fase cuadrática residual se aprecia ligeramente, cómo podemos ver al inicio del primer barrido. El proceso de optimización tiene el mismo comportamiento, a medida que se incrementa la energía disponible por nodo (centro de los barridos), la energía disponible es mayor y el ajuste realizado es mas efectivo. En definitiva logramos desplazarnos desde el pulso original expandido hasta el pulso final por transformada, explorando la contribución que tiene cada paquete de energía, asociado a un determinado rango de longitudes de onda (que es el que maneja cada pixel del SLM) mediante una exploración discreta y determinista del espacio de soluciones.

## Capítulo 5

# Resultados Experimentales

## 5.1. Restricciones experimentales

En esta sección se muestran los problemas mas importantes que nos hemos encontrado, y podido corregir en buena medida, relacionados con la fidelidad del observable experimental. A lo largo de los capítulos previos ya se han visto algunas limitaciones sobre el control que existen por el funcionamiento del *SLM* (apartados 3.3.3, 4.2.1), por el número de nodos de control usados (apartado 4.2.6).

Desde el punto de vista de un problema de optimización, nuestra capacidad de obtener una respuesta del sistema directamente relacionada, y reproducible, con las acciones de control que ejercemos es imperativo. Sin embargo, en todo sistema real existen perturbaciones que generan una variación en su respuesta que nos aleja de este ideal. Es por ello que esta sección aborda los problemas derivados del ruido experimental al que se ha tenido que hacer frente. Entendemos ruido en un sentido amplio, cómo todo aquello que nos perturba o distorsiona nuestra observación.

Hemos dividido los problemas de ruido en dos variedades, que no son ni absolutas ni excluyentes entre sí:

- **Intrínsecos.** Serán aquellos problemas inherentes la naturaleza de nuestro sistema experimental.
- **Emergentes.** En esta categoría se han introducido aquellos problemas que surgen a partir de la interacción del pulso láser a lo largo de su camino óptico, antes de generar el observable.

El ruido intrínseco va a provocar perturbaciones sobre la señal medida, es ruido en el sentido clásico de la palabra. El ruido emergente, si bien también provoca perturbación sobre la señal, ha sido separado porque es causa de una distorsión de la topología del espacio de soluciones que los algoritmos tienen que recorrer. Para los algoritmos evolutivos estas distorsiones pueden no suponer un problema insalvable. En el caso de *MODS*, dado su sustrato topológico, puede hacer inviable su aplicación en determinados casos.

Los problemas derivados del ruido que se muestran son en buena parte *salvables*, pero que de no tenerse en cuenta pueden comprometer seriamente el resultado de la experimentación.

### 5.1.1. Ruido intrínseco

Cómo ya refirió en la sección 3.2 el sistema laser posee fluctuaciones de energía pulso a pulso y a medio y largo plazo. Estas son principalmente debidas los procesos involucrados en la generación de los pulsos láser, oscilaciones en la potencia de bombeo, fluctuaciones de temperatura, fluctuaciones de índice de refracción, etc.

Estas fluctuaciones son inevitables. Para observarlas hemos utilizado el dispositivo mostrado en la Figura 5.1. Para monitorizar la energía de los pulsos utilizamos un fotodiodo PIN de silicio DET110 (*Thorlabs*), con un tiempo de subida de 20ns. Su comportamiento es lineal con la energía y presenta una banda de respuesta de 350 nm a 1100 nm. Para la monitorización de la duración temporal del pulso un fotodiodo de absorción a dos fotones<sup>58</sup> (TPA) G1115 (*Hamamatsu*). La respuesta en frecuencia de este último se muestra en la Figura 5.17, donde podemos ver cómo no posee sensibilidad en la longitud de onda de irradiación. Su señal dependerá de la absorción de dos fotones en la banda de 400 nm. Antes de alcanzar los fotodiodos el haz se comprime espacialmente utilizando un telescopio (2 : 1) para mejorar la señal de *TPA*, ya que se trabaja sin enfocar sobre el detector. Como control de energía utilizamos filtros metálicos y un control variable compuesto por una lámina retardadora  $\lambda/2$  y un cubo polarizador. El pulso se reparte entre los fotodiodos con un divisor de haz 97\3.

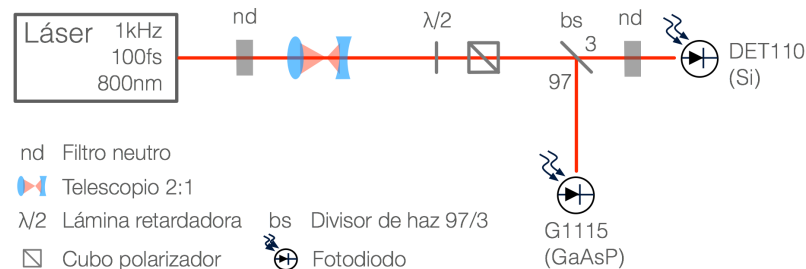


Figura 5.1: Dispositivo experimental utilizado para determinar las fluctuaciones asociadas a las oscilaciones naturales del láser en energía y duración de pulso. Utilizamos un fotodiodo lineal de *Si* y un fotodiodo de absorción de dos fotones de *GaAsP*

La señal de los fotodiodos se ha registrado durante una hora mediante un osciloscopio (*Yokogawa DL9140L*), adquiriendo una medida por segundo. La medición obtenida se muestra en la Figura 5.2. En la misma vemos la señal de *TPA* (rojo) y la señal lineal (negro). La señal está registrada sin promedios en el osciloscopio, a excepción de la zona señalada en la que se ha aplicado un promedio de 32 muestras. Se observan las oscilaciones a corto (variación instantánea de la señal), medio (con un periodo de unos 500 segundos) y largo plazo (la señal va decayendo con el tiempo). En la señal de *TPA* la amplitud de las oscilaciones se amplifica debido a su carácter no-lineal. Tenemos en ella una variación, respecto a su máximo superior al 20 % debido al proceso de respuesta cuadrática implicado<sup>59</sup>.

<sup>58</sup>La absorción a dos fotones se vera con detalle en el Capítulo 5.3.3, página 122, es un proceso no-lineal de tercer orden, cuya eficiencia depende de la densidad temporal y espacial de los fotones

<sup>59</sup>La calibración de la respuesta no-lineal se encuentra en la página 109, Figura 5.17

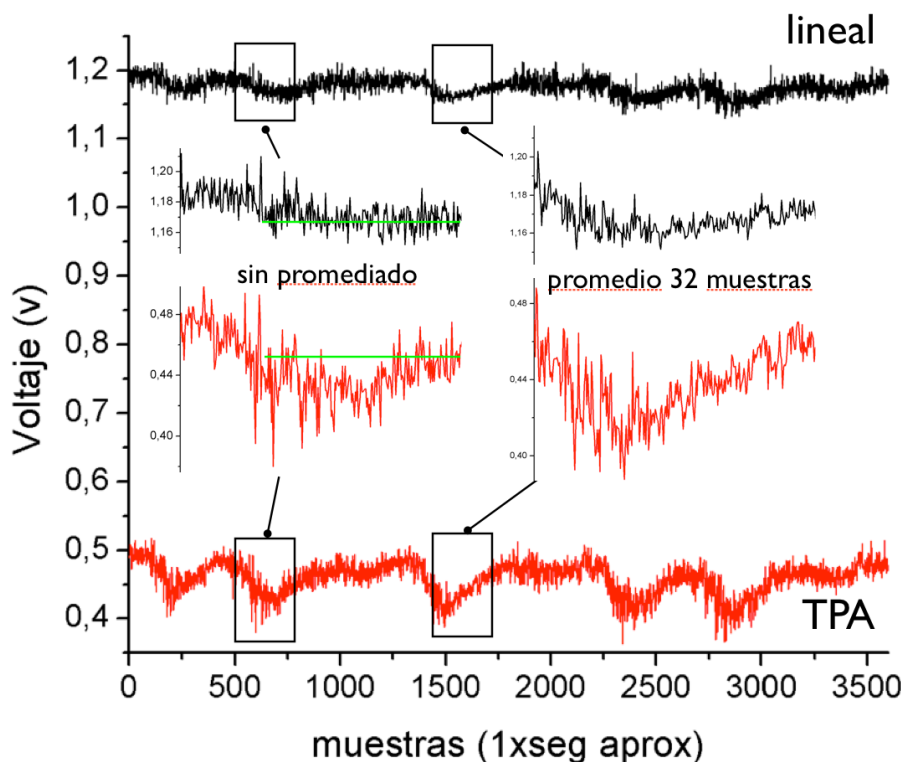


Figura 5.2: Registro de señal del fotodiodo de absorción a dos fotones y de fotodiodo lineal durante una hora, una muestra por segundo. Se aprecian variaciones en la señal *TPA* no existentes en la señal lineal, debidas a fluctuaciones temporales del pulso

En la figura hemos incluido líneas de guía para poder apreciar el detalle de la señal sin promedios (línea verde). Podemos ver que, si bien la señal lineal se mantiene estable en el medio plazo (con fluctuaciones media a medida) la señal de *TPA* presenta desviaciones no correlacionadas con la señal lineal: hay un descenso significativo en la zona central y se aprecian *spikes* que no tienen relación con la señal lineal. Estamos viendo las oscilaciones temporales del pulso láser. En la zona promediada este efecto es menos acusado, pero sigue presente.

En el interior del amplificador, el pulso es sometido a una expansión y a una posterior recompresión temporal. En estas dos operaciones las frecuencias que componen el pulso viajan espacialmente separadas. El problema surge de las corrientes térmicas de convección existentes en el interior de la caja del amplificador, debidas al calor producido en las células de pockels y en el cristal de Ti:zafiro donde se absorbe el bombeo. Estas fluctuaciones se traducen en cambios locales aleatorios del índice de refracción del medio por el que las componentes espectrales están viajando. Cada una de ellas experimenta un índice de refracción ligeramente diferente, modificando

su fase relativa. Se está produciendo una conformación temporal del pulso no controlada<sup>60</sup>. Dejamos de estar trabajando con un pulso estrictamente por transformada, obteniéndose un pulso mas ancho de lo deseado. Ello se traduce en un descenso de la señal de *TPA*.

Si observamos el histograma de ambas señales (fig. 5.3), vemos cómo el asociado a la señal de *TPA* se extiende hacia la izquierda (menos eficiencia del proceso), debido a estas expansiones temporales fortuitas del pulso, que no afectan a su energía total.

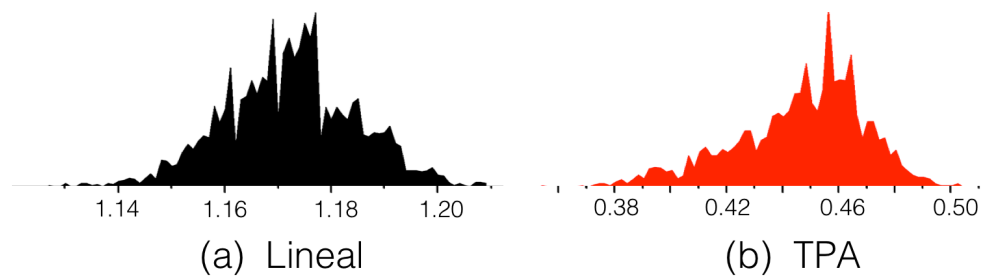


Figura 5.3: Histograma de las señales lineal (a) y de TPA (b). El histograma de *TPA* muestra cierta tendencia hacia valores inferiores, indicando la expansión temporal de los pulsos por fluctuaciones de índice del aire en el interior del amplificador

Para poder observar el comportamiento pulso a pulso utilizamos un Boxcar (*SR250 Gated Integrator, Stanford Research Systems*) para registrar la señal del fotodiodo de *TPA*. El Boxcar nos permite la adquisición de señales rápidas y repetitivas. En él disponemos de una puerta temporal de medida que se posiciona sobre la señal del fotodiodo de *TPA*. Un integrador de puerta amplifica e integra la señal presente durante el tiempo de puerta y nos proporciona el valor de esta integral en forma de una señal de voltaje. Hemos utilizado una puerta de 5 ns sincronizándola con los pulsos láser mediante la señal de disparo de la célula de pockels que extrae el pulso del Ti:Zafiro. De esta forma obtenemos el registro de todos los pulsos procedentes del amplificador funcionando con una frecuencia de pulso de 1 kHz, el resultado se muestra en la figura 5.4. Para comprobar la repetibilidad y detección de las medidas utilizamos una fase compuesta por 25 nodos y modificamos el valor del nodo central entre dos valores de fase diferente alternativamente. La señal *a* corresponde a una alternancia del nodo central entre 0 y 3 rad, la señal *b* entre 0 y 5 rad. La señal, en negro, incluida como referencia y obtenida de la electrónica del propio SLM, marca en el flanco de subida el momento en el que se manda la consigna de voltaje al SLM para el posicionamiento de fase. El flanco de bajada está posicionado a  $\approx 200$  ms. La señal

<sup>60</sup>Este efecto también se produce en el sintetizador de pulsos, principalmente debido a las corrientes que genera el sistema de aire acondicionado, pero se han podido amortiguar mediante un sistema de apantallamiento.

roja nos muestra la lectura de  $TPA$ . Podemos apreciar el transitorio de alineación de las moléculas de cristal líquido del SLM, este proceso de alineación tiene una duración de entre 200 y 250 ms<sup>61</sup>. La fase de 0 rad implica la aplicación de un mayor voltaje, debido a esto vemos cómo la alineación es mas rápida.

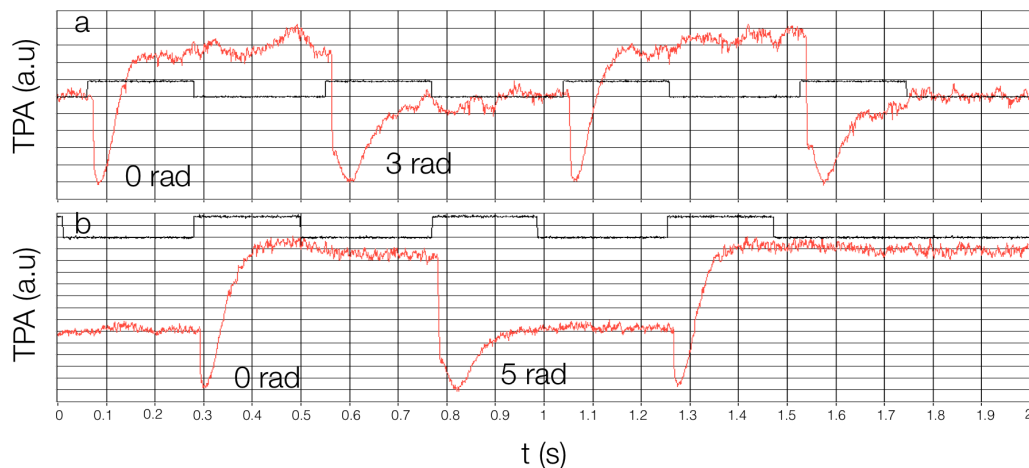


Figura 5.4: Registro pulso a pulso, mediante la utilización de un boxcar, de la señal del fotodiodo  $TPA$  ante cambios repetitivos de fase. Se aprecia el transitorio de alineación del cristal líquido en el  $SLM$  y el ruido existente en la señal.

Despues de poner todos los píxeles a 0 rad, la señal de  $TPA$  aumenta. La imposición de una fase plana no implica estructuración temporal y el pulso es el mas corto posible. Al cambiar el nodo la fase estructura el pulso y el proceso de absorción de dos fotones es menos eficiente. Las oscilaciones siguen estando presentes en la observación pulso a pulso, distinguimos dos tipos de oscilaciones de señal:

- *Oscilaciones pulso a pulso*. Entendemos que estas son inherentes al funcionamiento del sistema de amplificación, son oscilaciones de potencia y/o temporales.
- *Oscilaciones a medio plazo ( $> 20$  ms)*. Estas son debidas a fluctuaciones en la densidad del aire y vibraciones mecánicas de baja frecuencia ( Tránsito de personas, apertura de puertas, aire acondicionado,...). Estas provocan fluctuaciones que se traducen en variaciones de duración del pulso incontroladas y erráticas.

Respecto a las primeras poco podemos hacer, existe una propuesta que podemos ver en [42], donde se separan mediante una pantalla en el interior del amplificador

<sup>61</sup>Dato del fabricante



las áreas de expansión-compresión de pulso de la de amplificación. De esta forma las corrientes convectivas no afectarían al expansor-compresor. El segundo tipo de oscilaciones se ha logrado mejorar significativamente. Descubrimos que un elemento crítico era la posición del *SSA*<sup>62</sup> frente a la salida del amplificador. De alguna forma el *SSA* amplificaba las variaciones de presión del aire. La ubicación del *SSA* en otro lugar contribuyo a una mejora sustancial. Aun así, la obligación de utilizar aparatos de aire acondicionado para mantener la temperatura del laboratorio constante hace que existan corrientes de aire que siguen afectando al sistema de forma errática. Las dos señales mostradas (a,b) han sido registradas sin el *SSA* a la salida del amplificador. Están tomadas el mismo día con una separación temporal no mayor de una hora, y sin hacer modificaciones en el sistema experimental. A pesar de ello se aprecia una diferencia significativa en las oscilaciones de la señal. No hemos logrado identificar claramente el agente causante de estas oscilaciones temporales mas allá de las corrientes de convección.

### 5.1.2. Ruidos emergentes. Efectos no deseados de la manipulación de fase

Una de las características esperadas del sintetizador de pulsos mediante manipulación de fase es la conservación de la energía entre el pulso de entrada y el de salida. En la práctica, existe en el sistema una modulación de la amplitud del espectro asociada con los cambios de fase que introducimos a través del SLM, que hace que esto no se cumpla. Esta modulación se produce tanto en el propio sintetizador cómo a lo largo del camino que recorre el pulso antes de llegar al experimento. La causa principal de dicha modulación son las componentes de polarización de los pulsos. Tanto las redes de difracción de entrada y salida del sintetizador cómo el SLM deben trabajar con polarización horizontal. La existencia de componentes verticales de polarización hace que la eficiencia de las redes descienda y que en el SLM las componentes espectrales sufran una rotación de polarización<sup>63</sup>, dependiente de la fase impresa en cada pixel. Diferentes partes del espectro experimentan una diferente rotación de polarización debida a los diferentes cambios de fase inducidos que, en la red de difracción de salida, se verán difractadas con diferente eficiencia. Por otro lado, para poder trabajar con la máxima energía posible el haz que incide sobre las redes no se encuentra comprimido, teniendo una extensión de unos 8 mm de diámetro<sup>64</sup>. Este hecho hace que se genere difracción *off-axis* restando eficiencia al proceso de difracción.

<sup>62</sup>*SSA, Single Shot Autocorrelator, Positiva Light Inc.*

<sup>63</sup>Cuando la polarización del pulso incidente sobre el SLM es horizontal sólo se ve afectado por el índice extraordinario, modificando solamente su fase, conservandose la orientación de la polarización a la salida del cristal líquido

<sup>64</sup> $1/e^2$

El pulso emergente del sintetizador, en la práctica, puede poseer diferentes componentes de polarización vertical en diferentes sectores del espectro, dependientes de la fase aplicada. Si bien la componente vertical para una determinada componente espectral será porcentual, al atravesar componentes que discriminan polarización (atenuadores con lámina  $\lambda/2$  más cubo polarizador, ciertos recubrimientos...). Cada una de las componentes espectrales se verá afectada de forma ligeramente diferente. Esto conlleva una modulación selectiva de la intensidad espectral, que lleva aparejada una estructuración temporal.

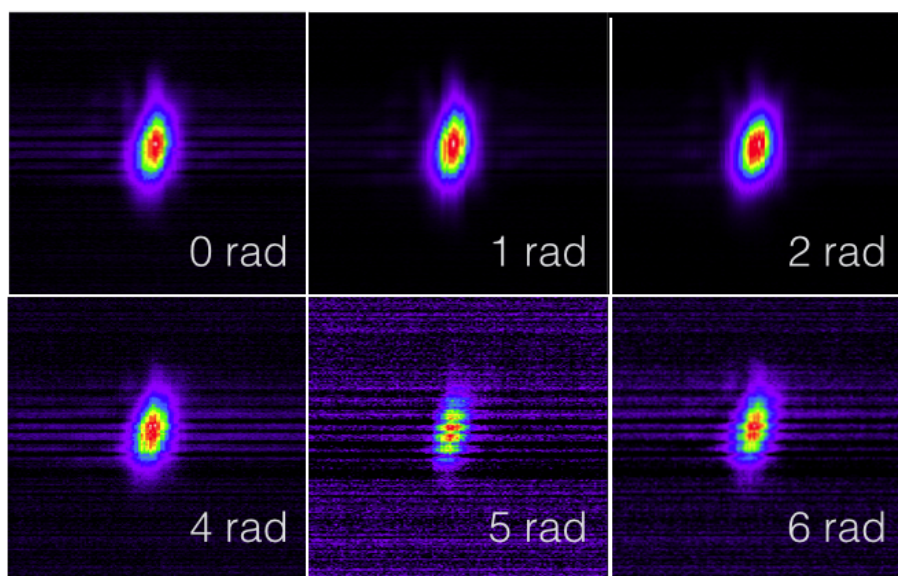


Figura 5.5: Trazas de *FROG* que muestran la modulación de amplitud consecuencia de la aplicación de fases planas de diferentes valores. Es especialmente notable para una fase de 5 radianes.

Por lo tanto, al realizar la una evaluación del efecto a optimizar al imponer una fase, estaremos observando no solo cómo afecta la fase a la interacción laser-materia, también cómo afecta el sistema experimental al pulso: tenemos una distorsión del espacio de soluciones, se ha contaminado. Esto podrá afectar a la eficiencia de los algoritmos, especialmente de *MODS*, basado en la existencia de las características topológicas de la interacción expuestas en el capítulo 4.5.1, página 69. La modulación indicada es fuertemente dependiente de la alineación del sistema, configuración del sintetizador y estabilidad del láser. Incluso puede presentar un comportamiento variable a lo largo de los días.

Para mostrar el efecto de la modificación de energía espectral debida a los cambios de fase en el siguiente ejemplo hemos puesto a prueba una de las invarianzas de las que hablábamos en el capítulo 4.2.7. En concreto analizamos si el pulso conserva su

energía ante fase constante de diferentes valores. Imprimimos sobre el *SLM* diversas fases planas con diferentes valores (0,1,2,4,5 y 6 radianes), y observamos sus trazas de *FROG*. El resultado se muestra en la Figura 5.5 donde podemos ver el evidente efecto de amplitud sobre el pulso. La energía del pulso se esparce sobre de la ventana temporal de forma especialmente notable en el caso de fases situadas en el tercer y cuarto cuadrante de fases (modificaciones de fase superiores a  $\pi$  radianes). Al examinar la figura debemos tener en mente que las trazas de *FROG* son autoescaladas y el contraste de color nos indica la diferencia de energía espectral a lo largo del tiempo. También se observa cierta modificación temporal, el pulso con fase de 2 rad es ligeramente mas ancho que los demás.

La consecuencia, cómo hemos señalado, es que la señal observada por los algoritmos tendrá dos dependencias, una asociada a la modulación de amplitud provocada por la fase impuesta y la otra del efecto en sí que estemos observando. Debido a ello hay que ser especialmente cuidadosos con los elementos por los que viaja el pulso a lo largo del sistema experimental, fundamentalmente filtros de polarización no controlados.

La optimización marginal, es decir, la observación del efecto temporal que existe a partir de la variación de un solo nodo de los que conforman la fase, es el núcleo del procedimiento de búsqueda de *MODS*. En la Figura 5.6 se muestra un ejemplo del tipo de efecto espectral pernicioso que podemos llegar a encontrar. Utilizamos una fase plana con valor  $0\text{rad}$  compuesta por 50 nodos y situamos el nodo 25 a 5 radianes. El espectro se mide a través del setup PG-FROG mediante su espectrómetro (Figura 3.13), pag 45. Cada nodo controla la energía correspondiente a 12 pixeles, se aprecia claramente el efecto localizado de esta cambio local de fase, causando una pérdida de energía espectral.

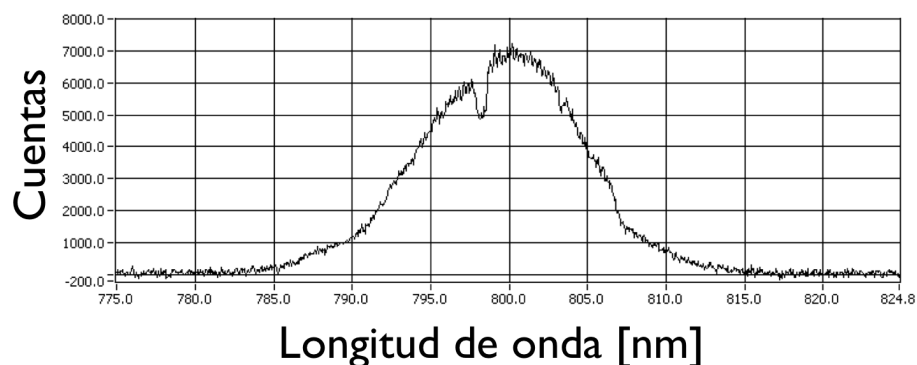


Figura 5.6: Efecto de la modulación de amplitud en el espectro del pulso. Se utilizan una fase compuesta por 50 nodos posicionados a 0 rad excepto el nodo 25 que se sitúa a 5 rad. Se aprecian cambios en la energía espectral asociada al cambio de fase.

Un ultimo ejemplo, en el que es especialmente notable cómo la estructuración de la fase puede afectar de forma catastrófica al pulso lo encontramos en la Figura 5.7. En la misma vemos dos fases compuestas por 50 nodos con valores de fase aleatorios. En la primera de ellas los valores han sido seleccionados dentro del rango  $[0, \pi]$ , de forma que no se produce el enrollado de la fase. En la segunda el rango se ha ampliado a  $[0, 3/2\pi]$ , forzando de esta forma el enrollado de la fase.

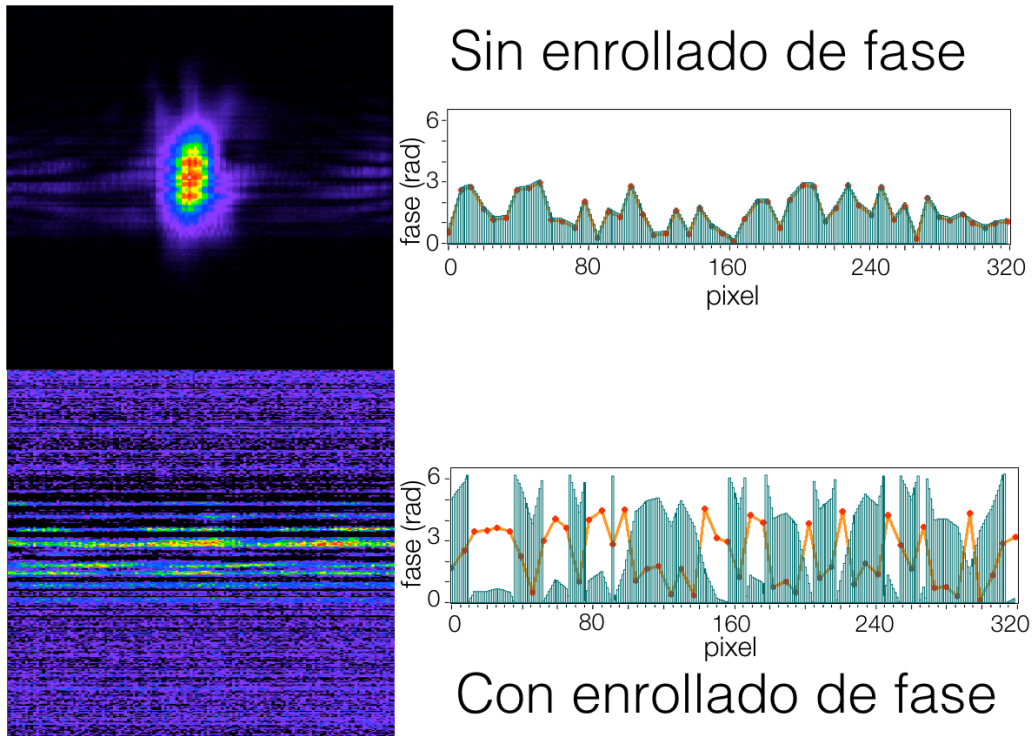


Figura 5.7: Efecto de una fase aleatoria con y sin enrollado de fases. Los saltos bruscos de fase generan pérdidas de energía espectral y distorsión temporal del pulso.

La interpolación lineal entre los valores de los nodos (puntos rojos) se muestra cómo una línea amarilla. La interpolación real aplicada se muestra con barras verdes. Esta representación mediante barras ha sido elegida por representar mejor lo que ocurre realmente en el SLM, donde sólo podemos sumar fase, en forma de variación de camino óptico. Una vez se ha producido el enrollado de la fase, la distorsión en nuestro pulso provoca que su energía se distribuya a lo largo de todo el tiempo, nos estando este efecto directamente relacionada con la fase aplicada sino, cómo hemos visto anteriormente, con los efectos no deseados de atenuación espectral selectiva. También nos afecta el efecto de atenuación que se produce al tener un alto contraste de fase entre dos píxeles adyacentes [15].

### 5.1.3. Conclusiones

Tanto las fuentes de ruido intrínsecas cómo las emergentes afectan negativamente al desarrollo de los algoritmos utilizados. Los ruidos intrínsecos (oscilaciones de potencia y temporales del pulso láser) limitan la precisión con la que podemos realizar nuestros ajustes de fase y, por lo tanto, el resultado que podemos llegar a obtener.

Por otro lado las oscilaciones de energía a medio plazo nos van a limitar el tamaño de las poblaciones en los algoritmos evolutivos. Si la población es muy grande, nuestra línea base de comparación entre los individuos variaría dentro de cada generación, falseando su comparación. Por ello, y también con el objetivo de minimizar la ventana de recursos consumidos, el tamaño de población se ha establecido en 10 individuos tanto para *DE* cómo para el *AG*. En el caso de *MODS* cada nodo utiliza su propia referencia, con lo que su ventana temporal de comparación será de  $2+S^{65}$ , utilizamos típicamente valores de  $S=2$  o  $S=3$ , ligeramente inferior al número de evaluaciones en una generación en los evolutivos.



Figura 5.8: Feedback de *MODS* durante un barrido y optimización de mérito. La modulación de amplitud hace que cualquier cambio introducido en la fase empeore la señal. Se puede apreciar el contorno espectral.

Las distorsiones emergentes debidas a la modulación de pulso tienen un efecto directo sobre el espacio de soluciones que observamos. Para los algoritmos evolutivos esto no debe suponer un problema, ya que ellos no hacen ninguna asunción acerca del espacio. Este efecto, sin embargo, socava las bases de *MODS*. Los efectos de la modulación de amplitud no deseada en el proceso de optimización llevado a cabo en *MODS* se ejemplifican claramente en la Figura 5.8, obtenida bajo condiciones de fuerte modulación de amplitud (sistema experimental no optimizado). El registro corresponde a un intento de maximización la señal de *TPA*. Se muestran todas las evaluaciones realizadas por *MODS* durante un barrido de optimización. A medida que recorremos los nodos cualquiera de las fases de prueba aplicadas suponen una pérdida de energía debida a la modulación de amplitud. Incluso podemos ver que la amplitud de este ruido sigue al espectro. Estamos intentando optimizar las fases, pero la modulación temporal introducida es indistinguible de la modulación de amplitud

<sup>65</sup>Tres muestras en la evaluación inicial mas una muestra por salto de refinamiento

espectral. Se conforma un espacio de soluciones en el que el del efecto relacionado con el pulso está contaminado.

A pesar de lo comentado anteriormente es posible minimizar el impacto de estos efectos mediante alineación y puesta a punto del amplificador, la alineación cuidadosa del sintetizador, la eliminación de los elementos que introducen discriminación por polarización en el experimento y la utilización de medidas promediadas del observable para mejorar la señal detectada.

Gracias a ello se alcanzan en la mayor parte de las situaciones condiciones en las que *MODS* funciona con excelentes resultados.

## 5.2. Generación de formas de onda arbitrarias

La aplicación de las técnicas de conformación temporal de pulsos ultracortos en la optimización de procesos de interacción no-lineal está directamente relacionada con la capacidad del sistema de generar formas de onda arbitraria, entendiendo por forma de onda arbitraria cualquier tipo de forma de onda  $|E(t)|$ , que presente una distribución temporal de la energía diferente de la original. La capacidad de generación de formas de onda en el sistema esta restringida por las limitaciones intrínsecas de nuestro sistema de conformación (número de pixeles, resolución en el cambio de fase, relación entre espacio entre pixeles/ ancho de pixel,...), el ancho de banda disponible en el pulso láser, el sistema de control de la fase y por el hecho de estar utilizando modulación de fase (sin modulación de amplitud). En el capítulo 4.2 vimos cómo para intentar dotar de la máxima flexibilidad al sistema de control hemos optado por la utilización de nodos de control sobre la fase. En esta sección evaluaremos la capacidad de *DE* y *MODS* en la conformación de formas de onda arbitrarias.

La tarea es encontrar la fase necesaria para conformar el pulso gaussiano de entrada en un pulso de salida con una estructuración temporal arbitraria  $|E_{target}(t)|$ . El pulso de salida del sintetizador es  $\tilde{E}_{out}(\omega) = \tilde{E}_{in}(\omega)H(\omega)$ , siendo  $H(\omega)$  la función de transferencia del sistema sujeta a la restricción de conservación de la energía impuesta por la utilización de modulación de fase,  $|H(\omega)| = 1$ . Esta restricción implica que no existe una solución exacta en el caso general, por lo que tendremos una aproximación a nuestro objetivo,  $|E_{out}(t)| \approx |E_{target}(t)|$ . Para obtener la fase necesaria se pueden aplicar algoritmos de búsqueda, como algoritmos genéticos [77] o simulated annealing [78]. Entre los algoritmos utilizados destaca la adaptación del algoritmo iterativo de Gerchberg-Saxton (*GS*) [17], que ofrece soluciones con un alto grado de ajuste y una elevada velocidad de convergencia, siendo el más usado. El resultado de *GS* para lograr  $|E_{target}(t)|$  será nuestro patrón de comparación.

Así que evaluamos el comportamiento *DE* y *MODS* a la hora de generar pulsos arbitrarios, así como su comportamiento frente a diversos parámetros como el número de nodos de conformación de fase o, en el caso de *MODS*, el punto inicial de búsqueda.

### 5.2.1. Descripción experimental

Para resolver el problema de recuperación de la fase de forma objetiva utilizaremos una adaptación del algoritmo de Gerchberg-Saxton [17] para obtener la aproximación *patrón* a  $|E_{target}(t)|$  que utilizaremos en la evaluación de *MODS* y *DE*.

Veamos primero cómo funciona *GS*. En el dominio tiempo-frecuencia *GS* es capaz de sintetizar la fase espectral, que codifica una forma temporal  $|E(t)|$ , proporcionando una buena aproximación a la forma de pulso objetivo,  $|E_{target}(t)|$ . Todo ello sujeto a la restricción derivada de la conservación de la energía espectral entre el pulso de

entrada y el de salida. El Algoritmo 4 nos muestra los pasos que ejecuta *GS* para hacer la reconstrucción de la fase.

---

**Algoritmo 4** Algoritmo de Gerchberg-Saxton

---

- 1: **repeat**
  - 2:    $E_k(t) = |E_k(t)| e^{i\phi_k(t)} = FFT^{-1} \{ \tilde{E}_k(\omega) \}$  ▷ fase inicial random
  - 3:    $E'_k(t) = |E_{target}(t)| e^{i\phi_k(t)}$
  - 4:    $\tilde{E}'_k(\omega) = \left| \tilde{E}'_k(\omega) \right| e^{i\phi'_k(\omega)} = FFT \{ E'_k(t) \}$
  - 5:    $\tilde{E}_{k+1}(\omega) = \left| \tilde{E}'_{meas}(\omega) \right| e^{i\phi_{k+1}(\omega)}, \phi_{k+1}(\omega) = \phi'_k(\omega)$
  - 6: **until**  $|E_k(t)|$  satisfaga la condición de salida
- 

GS hace uso en los espacios conjugados de tiempo-frecuencia, de forma iterativa, de las dos restricciones invariantes que existen en el problema: el pulso objetivo  $|E_{target}(t)|$  y el espectro disponible,  $|E(\omega)|$ . El proceso comienza con una transformada rápida de Fourier<sup>66</sup> inversa  $FFT^{-1}$  del pulso en frecuencia suponiéndole una fase arbitraria, en nuestro caso como módulo espectral utilizamos una envolvente gaussiana sintética. Se obtiene  $E_k(t)$  y su módulo es sustituido por el pulso objetivo para crear  $E'_k(t)$ , sobre el que aplicamos una  $FFT$  para volver al dominio de la frecuencia y sustituimos la amplitud espectral resultante,  $\left| \tilde{E}'_k(\omega) \right|$  por  $\left| \tilde{E}'_{meas}(\omega) \right|$ , reteniendo la fase obtenida. El proceso se repite hasta que  $E_k(t)$  satisface la condición de detención, en nuestro caso ha sido la estabilización de la convergencia.

Vemos cómo teniendo una caracterización espectral de nuestro pulso podemos obtener la fase necesaria para generar un  $|E_{target}(t)|$ . ¿Por qué no se usa esta aproximación en el bucle de optimización experimental?. La respuesta es que  $|E_{target}(t)|$  es, precisamente, nuestra incógnita. En la optimización experimental observamos la interacción del pulso, no el pulso en sí. Si hubiéramos escogido realizar la búsqueda en el dominio del tiempo, en el que los algoritmos generaran un  $E_{trial}(t)$  en vez de  $\phi_{trial}(\omega)$ , habríamos necesitado utilizar *GS* para obtener la fase a imprimir.

El bucle de optimización en el que los algoritmos van a testarse se muestra en la Figura 5.9. Las fases de prueba generadas por los algoritmos,  $\phi_{trial}$ , son añadidas a un espectro gaussiano sintético,  $|A(\omega)|$ , obteniendo su representación temporal mediante una  $FFT^{-1}$ . Se utiliza el mismo espectro gaussiano que el utilizado por GS para obtener el patrón de comparación.

$$E_{trial}(t) = FFT^{-1} \{ |A(\omega)| e^{i\phi_{trial}(\omega)} \} \quad (5.1)$$

---

<sup>66</sup>Fast Fourier Transform



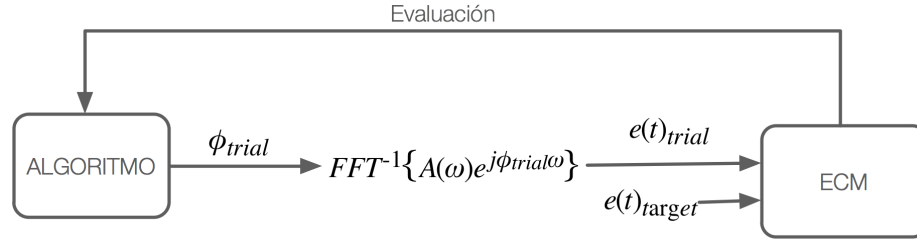


Figura 5.9: Esquema del bucle de optimización utilizado para testar los algoritmos. La fase generada por el algoritmo es añadida a un espectro sintético. Se aplica entonces un observador, en este caso el *ECM* de la forma temporal generada y la objetivo, que nos devuelve la señal de evaluación.

La realimentación se obtiene realizando una comparación entre  $|E_{trial}(t)|$  y  $|E_{target}(t)|$  mediante su error cuadrático medio (*ECM*), realizamos una optimización de costo.

$$costo = \frac{1}{N} \sum_{n=0}^N ||E_{target}(t)| - |E_{trial}(t)||^2 \quad (5.2)$$

Ademas de estimar la capacidad de *MODS* y *DE* en la generación de formas de onda arbitrarias hemos hecho una exploración de la configuración de los parámetros  $F$  y  $C$  para *DE* en vistas a su utilización en el plano experimental. También se ha realizado una evaluación del comportamiento de *MODS* frente al punto de partida.

### 5.2.2. Resultados experimentales

La forma de onda elegida, así como el resultado ofrecido por *GS* en su ajuste se muestran en la Figura 5.10. El objetivo es un doble pulso asimétrico con una separación temporal de  $\approx 4$ ps. como se aprecia *GS* no realiza un ajuste exacto de la forma y presenta pulsos satélite de diferentes amplitudes y duraciones.

Se realizan conformaciones mediante *MODS* y *DE*, utilizando fases compuestas por 50 y 200 nodos, realizando optimización de costo. El número de nodos utilizados tiene dos efectos contrapuestos. En principio, al descender el número de nodos la velocidad de convergencia aumenta, pero el ajuste resulta menos exacto, y viceversa, a mayor número de nodos se puede conseguir una fase más precisa, pero a costa de un incremento del tiempo de convergencia. Se presenta a continuación una evaluación del comportamiento general. En todos los casos realizaremos un análisis cualitativo de los resultados.

Sobre *DE* se ha analizado su comportamiento en función de los parámetros  $F$  y  $C$ , explorando la convergencia ante una muestra amplia de valores, explorando todas las combinaciones posibles de los valores  $F=[0.5, 0.7, 0.9]$  y  $C=[0.5, 0.7, 0.9]$ . Se utiliza

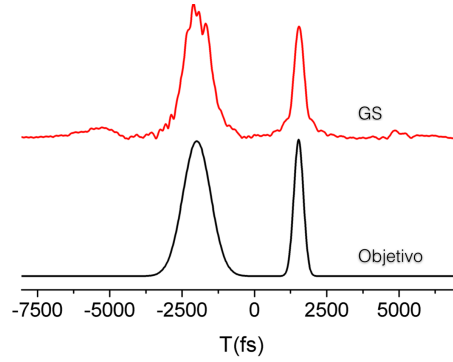


Figura 5.10: Pulso objetivo y resultado de aproximación conseguida mediante el algoritmo de Gerchberg-Saxton

una población de 10 individuos inicializada con una distribución aleatoria uniforme en el intervalo  $[0, 2\pi)$  y con una probabilidad de aplicación de mutación trigonométrica  $pt=0.05$ , la detención se ha fijado en 10000 evaluaciones. Cada una de las combinaciones de parámetros se han evaluado durante 10 lanzamientos, presentandose el resultado promedio de los lanzamientos.

Las curvas promedio obtenidas se muestran en la Figura 5.11, donde se ha añadido el resultado de costo obtenido por *GS*, representado por la línea naranja horizontal. Con el fin de facilitar la interpretación de las curvas obtenidas hemos realizado *mapas de costo* donde se refleja el valor final de costo, representado mediante una tabla de colores, en función de ambos parámetros  $F$  y  $C$ .

Utilizando 50 nodos los resultados alcanzados son de inferior calidad a los obtenidos al utilizar 200. Esto es debido a que 50 nodos no son suficientes para poder conformar la fase de forma suficientemente precisa. La utilización de 200 nodos sí es suficiente, como veremos en los resultados de *MODS*, pero el tiempo de optimización requerido por *DE* para lograr la convergencia es superior a las 10000 evaluaciones que se han puesto como condición de detención. Se observa cómo hay curvas que aún no han convergido y que es posible que llegaran a alcanzar el resultado de costo obtenido por *GS*. Los peores resultados corresponden a valores altos, tanto de  $C$  como de  $F$ . También observamos una mayor dispersión en las soluciones al utilizar 200 nodos, asociada al mayor espacio de búsqueda implicado.

La superficie del mapa de soluciones es interpolada a partir de los datos correspondientes a las coordenadas de  $F$  y  $C$  (marcadas mediante puntos). En el caso de la utilización de 50 nodos el comportamiento mejor al aumentar los valores de  $F$  y  $C$ , es decir, el rango de búsqueda es mayor<sup>67</sup>. Nos está indicando que el esfuerzo de

<sup>67</sup>El parámetro  $F$  modula la amplitud de las mutaciones introducidas y  $C$  la variabilidad que existe en la población mutada

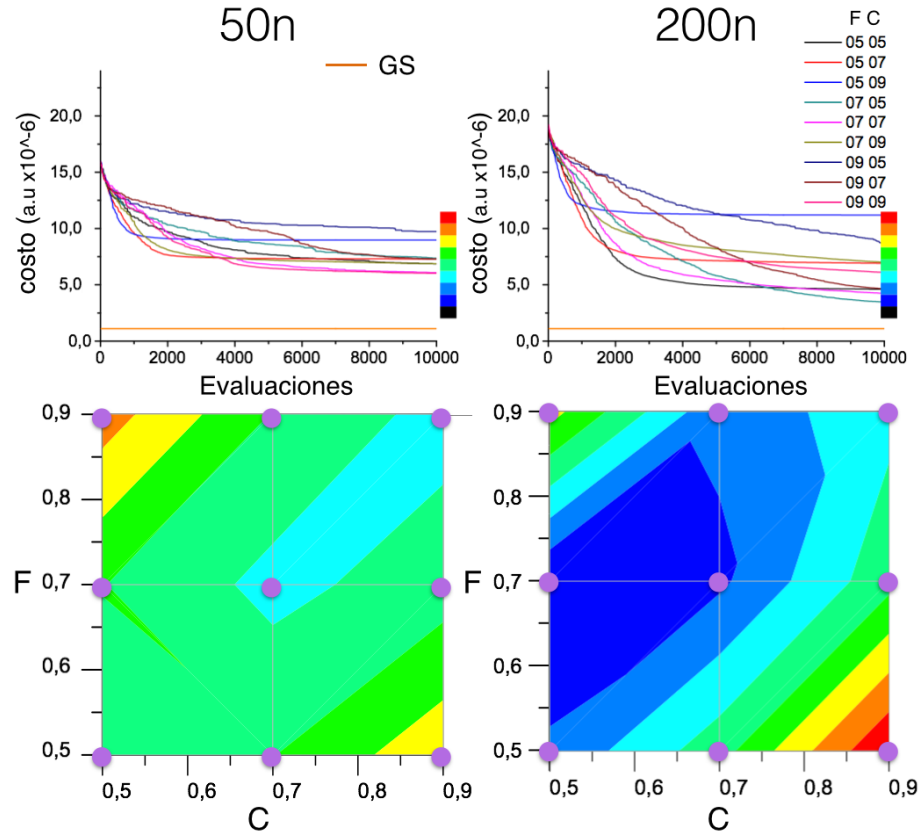


Figura 5.11: Curvas de convergencia de  $DE$  en la optimización frente a los parámetros  $F$  y  $C$ , para 50 y 200 nodos. Mapas interpolados de bondad de la solución obtenida en función de los parámetros evaluados. La línea naranja indica el resultado alcanzado por  $GS$

búsqueda es mayor. Al incrementar el número de nodos la situación se invierte. Ahora tanto  $F$  como  $C$  presentan valores bajos para lograr mejores ajuste. Las soluciones son mas accesibles. La combinación  $F=0.7$ ,  $C=0.7$  parece un compromiso adecuado para ambos números de nodos.

En la evaluación de  $MODS$  pretendemos observar cómo se comporta, además de frente el número de nodos, ante los diferentes tipos de barridos de fase y frente a la fase inicial (punto de partida en el espacio de soluciones). Hemos analizado barrido secuencial, aleatorio y por energía. El punto de partida es evaluado partiendo de una fase plana de  $0 \text{ rad}$  y una fase aleatoria con distribución uniforme  $[0, 2\pi) \text{ rad}$ . Por cada una de las pruebas se han realizado 10 lanzamientos y se muestra el promedio en el caso de fase aleatoria de partida. Por su carácter determinista esta operación no es necesaria cuando utilizamos una fase de partida plana. La configuración elegida es

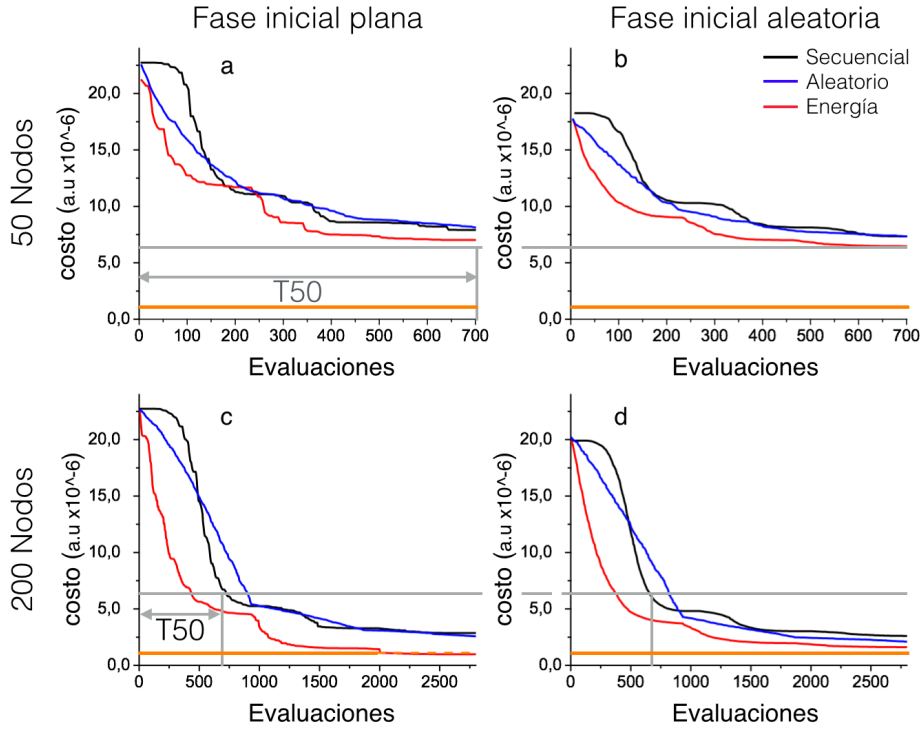


Figura 5.12: Comportamiento de *MODS* utilizando 50 y 200 nodos, partiendo de fase plana=0 rad. y aleatoria  $[0, 2\pi)$ , utilizando recorridos secuencial, aleatorio y por energía de los nodos. El recorrido por energía resulta más efectivo en todos los casos, 50 nodos son insuficientes para la conformación de fases. Se incluyen líneas visuales para la comparación de los resultados y tiempos de convergencia entre 50 y 200 nodos.

*MODS/3-2-3* , 3 barridos con 2 saltos en el primero, tres en los siguientes.

Antes de examinar los resultados globales analizaremos en el comportamiento de las curvas en función del tipo de recorrido. Para ello nos centramos en la evolución de las curvas sobre el primer barrido partiendo de fase aleatoria utilizando 200 nodos<sup>68</sup>. La evolución de estas curvas depende de la cantidad de energía asociada a la posición de cada nodo y a su orden de optimización. En el caso de recorrido secuencial (negro) la curva presenta una evolución sigmoidal, al inicio y final del barrido estamos optimizando en las colas espectrales, donde casi no hay energía y por tanto no hay optimización. Cuando optimizamos en función de la energía espectral (rojo) la mayor parte de la optimización se realiza al principio de la curva. En el caso de selección aleatoria obtenemos una linealización del proceso de convergencia.

En la Figura 5.12 vemos el resultado promedio de las optimizaciones ante los

<sup>68</sup>Una imagen ampliada la encontramos en la Figura 4.9, página 76

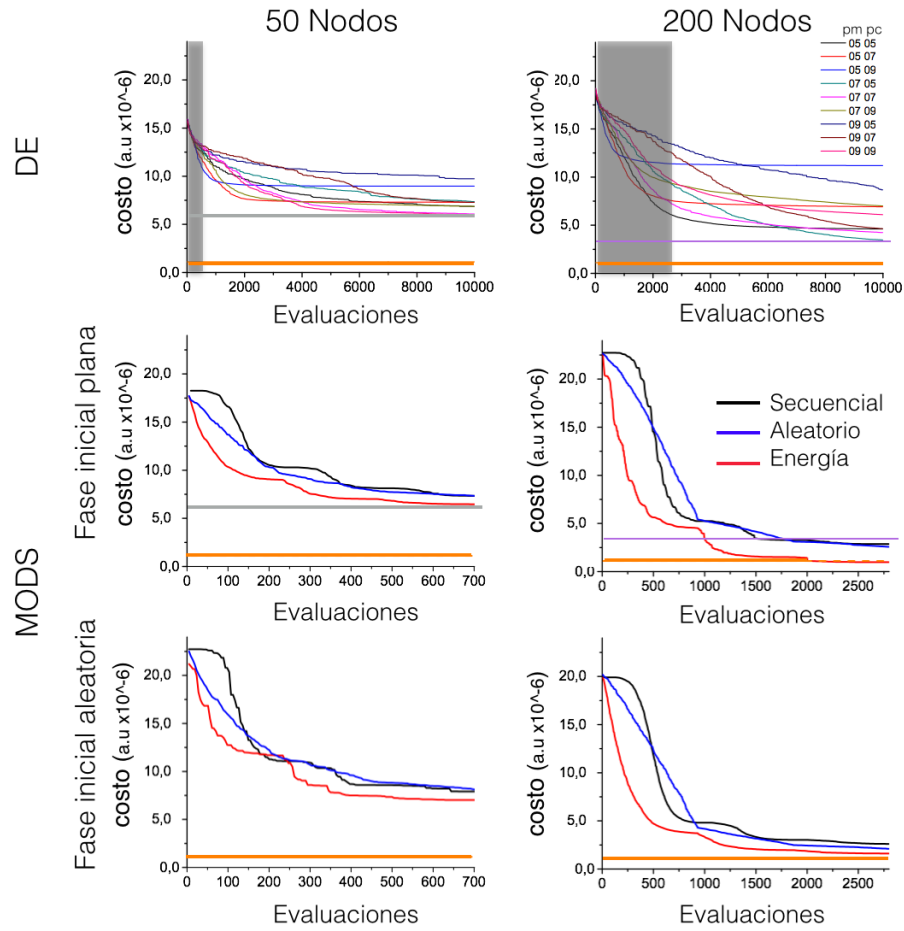


Figura 5.13: Comparación entre todos los resultados obtenidos. las evaluaciones requeridas por *MODS* para igual número de parámetros se han marcado con un rectángulo gris sobre *DE*, así como una guía visual del mejor resultado alcanzado. El resultado de *GS* coincide con el alcanzado por *MODS* utilizando 200 nodos y barrido por energía

diferentes parámetros. El valor de coste óptimo, determinado por el valor alcanzado por *GS* se representa por una línea naranja. Sobre 50 nodos *MODS/3-2-3* emplea 701 evaluaciones y 2801 para 200 nodos. En todos los casos los mejores resultados son los obtenidos en recorrido por energía, seguido por el aleatorio y el recorrido secuencial en ultimo lugar.

Al igual que sucedía en la optimización con *DE*, la modelización de la fase mediante 50 nodos no ofrece el control temporal suficiente como para alcanzar el resultado ofrecido por *GS*. La inicialización desde fase aleatoria logra mejorar ligeramente el valor de costo alcanzado frente a la fase plana. Sobre 200 nodos la convergencia alcanzada por el recorrido por energía partiendo de fase plana iguala al conseguido

por *GS*. Cuando inicializamos desde una fase aleatoria, el resultado del recorrido por energía empeora ligeramente y el resto de recorridos presenta una ligera mejora. Se han incluido marcas visuales (gris) que indican el mejor nivel alcanzado y tiempo de optimización requerido para 50 nodos.

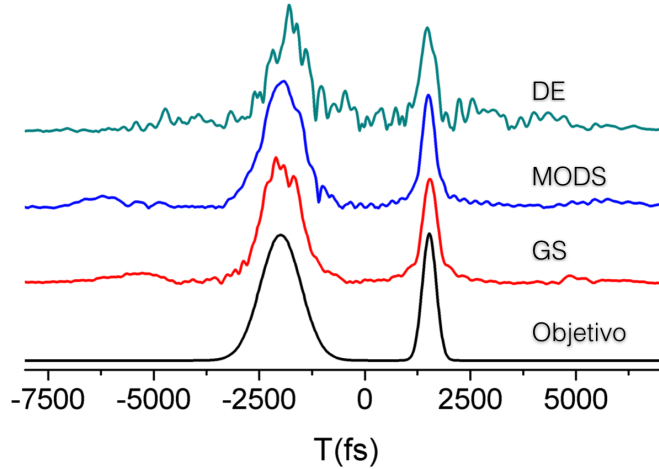


Figura 5.14: Mejores aproximaciones al objetivo temporal. *GS* y *MODS* obtienen un resultado similar, *DE* se aproxima a la solución, pero aún está lejos de poder considerarse una buena solución.

La comparación conjunta de los resultados de ambos algoritmos se muestra en la Figura 5.13. Sobre las gráficas correspondientes a *DE* se ha dibujado una zona sombreada correspondiente a las evaluaciones que requiere *MODS* ante el mismo número de nodos. Asimismo se incluyen guías visuales para poder comparar el resultado obtenido por número de nodos. En el caso de 200 nodos esta guía es el propio valor conseguido por *GS*. En el caso de la utilización de 50 nodos los resultados alcanzados por ambos algoritmos se sitúan en el mismo nivel, pero *MODS* tiene una clara ventaja al utilizar únicamente 701 una evaluaciones frente a las 10000 utilizadas por *DE*. Sobre 200 nodos *MODS* alcanza en 2801 evaluaciones un valor equivalente al proporcionado por *GS*.

Una comparativa visual de los mejores ajustes conseguidos por los algoritmos, junto con el objetivo, se muestra en la Figura 5.14, donde vemos cómo *GS* y *MODS* presentan soluciones que conforman el pulso objetivo con ligeras diferencias, recordemos que no existe una solución exactas a este problema. Esto se transforma en la existencia de múltiples mínimos locales, por lo que ambas soluciones pertenecen a alguno de esos mínimos. *DE* aún está lejos lograr una conformación adecuada, aunque no descartamos que pudiera lograrla con un número suficiente de evaluaciones.

En la Figura 5.15 se muestran dos ajustes de una forma de onda arbitraria con

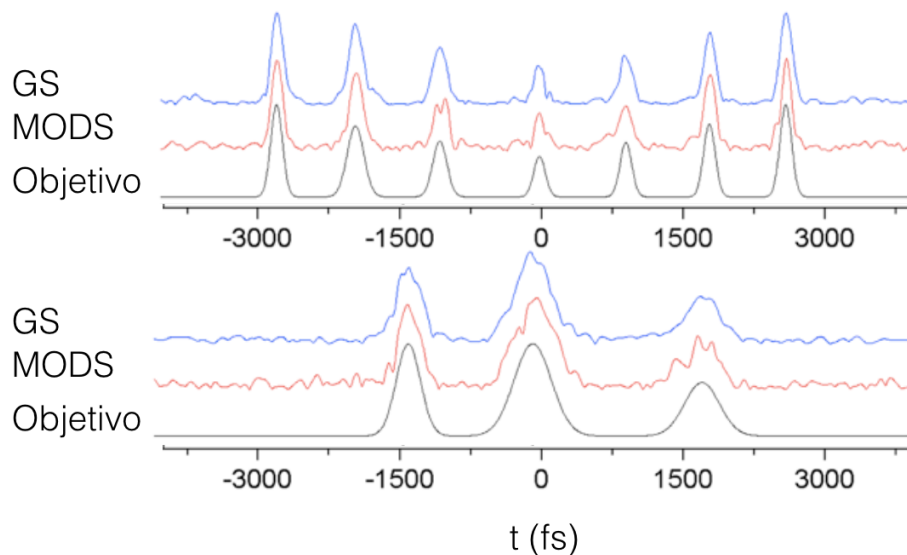


Figura 5.15: Soluciones obtenidas por  $MODS/320/p/s/3-3-3$  comparadas con el resultado de  $GS$  al generar dos formas de onda compuestas por 7 y tres pulsos. Los resultados son esencialmente iguales.

una mayor complejidad, el pulso objetivo esta conformado por un tren de siete pulsos (5.15.a) y un tren de tres pulsos (5.15.b) respectivamente. En ambos casos se ha utilizado  $MODS/320/p/s/3-3-3$  320 nodos partiendo de fase plana con barrido secuencial, utilizando para el ajuste 4801 evaluaciones. El objetivo no es competir con  $GS$  (necesita tan solo decenas de iteraciones), sino comprobar que  $MODS$  posee la capacidad de recorrer el espacio de soluciones y su viabilidad de aplicación sobre la generación de pulsos arbitrarios. En ambos casos las soluciones ofrecidas por  $MODS$  son de una calidad comparable a las ofrecidas por  $GS$ .

### 5.2.3. Conclusiones

Hemos comprobado la capacidad de  $MODS$  para poder resolver un problema de obtención de una distribución arbitraria de energía, capacidad que consideramos imprescindible para su aplicación en problemas experimentales.

$MODS$  alcanza soluciones de una calidad comparable a la que ofrece el algoritmo estándar en este tipo de problemas ( $GS$ ), utilizando un número de evaluaciones muy reducido en el proceso.

En comparación DE, una estrategia evolutiva, tiene un comportamiento solo discreto si observamos las soluciones finales. Hay que tener en cuenta que estamos restringiendo un poco sus condiciones de trabajo. El número de variables a optimizar es

muy elevado y estamos utilizando una población ciertamente reducida: 10 individuos para optimizar 200 dimensiones en el peor de los casos. Se ha mantenido bajo el tamaño de la población para intentar tener bajo número de evaluaciones total (ventana de recursos consumidos).

Comprobamos, asimismo, como el número de nodos necesarios para la conformación temporal nos limita las soluciones accesibles en la optimización. Su disminución por debajo de un determinado número, que será dependiente del problema a optimizar, hace inaccesible la solución correcta.

Hemos visto cómo *MODS* presenta un comportamiento robusto y eficiente para este problema. Esto nos muestra la capacidad de la optimización marginal para realizar una distribución adecuada de la energía espectral a lo largo del tiempo. En los siguientes experimentos veremos cómo *MODS* también resulta altamente efectivo cuando nuestro observable es un efecto físico real.



## 5.3. Compresión de pulsos

Cuando un pulso viaja a lo largo de un sistema óptico sufre de diversos efectos de dispersión espectrales que afectan a su duración. En general los efectos de dispersión están relacionados con las variaciones del índice de refracción ( $n$ ) con la longitud de onda ( $\lambda$ ). Así, las diferentes derivadas  $\frac{d^x n}{d\lambda^x}$  afectaran a la duración del pulso a lo largo de su propagación.

La utilización de técnicas para compensar esta dispersion, de manera que el pulso posea una duración mínima en la región de interacción es importante. Esta compensación se puede realizar mediante diversos métodos experimentales cómo la utilización de pares de redes de difracción o de prismas [79], pero poseen limitaciones en el orden de dispersión que pueden compensar, así cómo un carácter estático que supone un problema ante cambios en el sistema experimentales. La utilización de un ajuste dinámico adaptativo en bucle cerrado para la compensación de la dispersión ha sido demostrado con anterioridad [21] [25], y es ampliamente utilizada debido a sus versatilidad y capacidad de compensar efectos dispersivos de orden superior a los montajes estáticos.

En los experimentos de compresión de pulsos hemos utilizado cómo observables dos fenómenos que son dependientes de la intensidad de pulso y, por lo tanto, de su duración temporal: la absorción de dos fotones ( $TPA^{69}$ ) y la generación de segundo armónico ( $SHG^{70}$ ).

En el caso de  $TPA$  se ha realizado la compresión de pulsos sometidos a trino introducido en el amplificador, así cómo la compresión de pulsos distorsionados mediante ruptura dieléctrica en aire. En ambos casos se ha comparando la velocidad de convergencia de  $MODS$  frente a un algoritmo genético.

En la compresión sobre  $SHG$  se ha realizado compresión de pulsos mediante  $MODS$  utilizando cómo observable la generación de  $SHG$  en nanocristales de  $BaTiO_3^{71}$ .

### 5.3.1. Absorción de dos fotones

El fenómeno de  $TPA$ , cuyos fundamentos se han visto en el capítulo 2, implica la transición de un electrón, desde su estado de energía fundamental a un estado excitado, mediante la absorción simultánea de dos fotones. Cada uno de ellos no posee por si mismo la suficiente energía para poder salvar la energía entre ambos niveles, por lo que esta se efectúa a través de un nivel *virtual* intermedio. Es esquema del proceso se muestra en la figura 5.16.

En nuestro caso utilizamos la fotocorriente inducida por el proceso de  $TPA$  en

---

<sup>69</sup>Two Photon Absorption

<sup>70</sup>Second Harmonic Generation

<sup>71</sup>Titanato de Bario

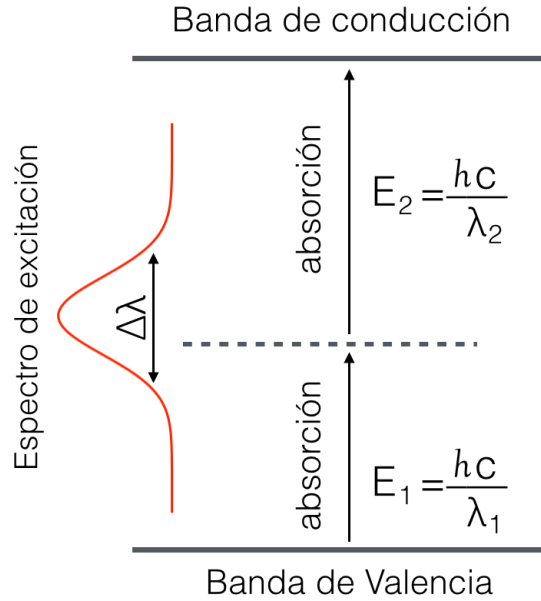


Figura 5.16: Mecanismo de la absorción a dos fotones. Cada fotón individual no posee la energía suficiente para forzar la transición entre la banda de valencia y la de conducción del semiconductor. La energía resultante de la absorción simultánea de dos fotones permite la promoción del electrón a su estado excitado. Estos dos fotones provienen de la banda espectral del pulso de excitación.

un diodo semiconductor. La transición de dos fotones no corresponde a un nivel molecular sino a la transición entre la banda de valencia y la de conducción del semiconductor. Aunque la formulación cuántica del problema presenta diferencias, puede demostrarse [76] que la utilización de fenómenos de *TPA* en semiconductores es válida para determinar el grado de compresión de un pulso, con una señal que escala proporcionalmente a  $\int |E(t)|^4 dt$ . La explicación intuitiva de lo que ocurre es que cuanto mayor número de fotones coexistan por unidad de tiempo mayor será la probabilidad de que la absorción simultánea de dos fotones se produzca. Por lo tanto, un pulso mas corto, donde tenemos mayor densidad temporal de fotones, incrementara nuestra señal.

En los experimentos de optimización se realiza la optimización temporal del pulso láser, sometido a distorsiones temporales con dos orígenes diferentes. En primer lugar usaremos una expansión temporal debida a la introducción de trino en la etapa de compresión del amplificador. Posteriormente se analizará la compresión de un pulso que sufre distorsiones espectrales y temporales debidas a ruptura dieléctrica en aire.

### 5.3.1.a. Sistema experimental

El sintetizador de pulsos utilizado para la realización de este experimento es el denominado *Sintetizador 1* (tabla 3.3.1, página 34). Utiliza una configuración 4f, con lentes cilíndricas de 258mm de focal y redes de difracción de 2000 líneas, presentando una resolución de, aproximadamente, 0.2 nm/px.

Se realiza la optimización de la fotocorriente generada por *TPA* en un fotodiodo semiconductor de GaAsP<sup>72</sup> (G1115 *Hamamatsu*). En su respuesta espectral, Figura 5.17, vemos cómo no posee absorción a la longitud de onda de irradiación (799nm), con lo que la fotocorriente inducida que detectamos es la debida a la absorción a dos fotones en la banda de 400 nm.

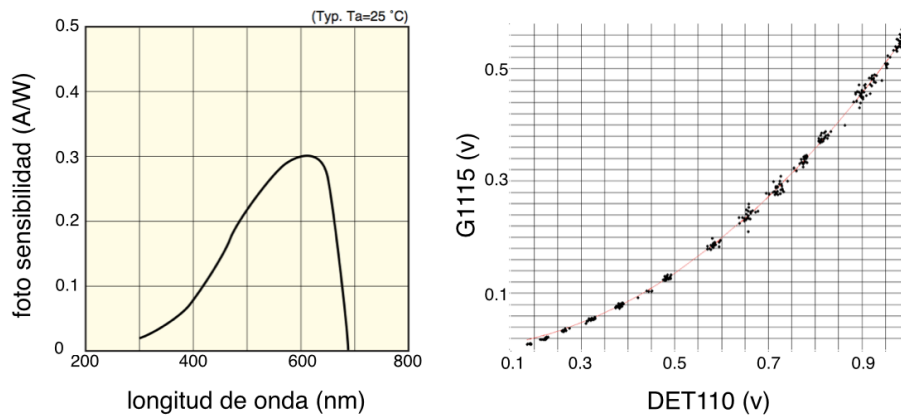


Figura 5.17: Respuesta espectral de absorción del fotodiodo G1115, donde se observa que no posee absorción en 799 nm. Curva de calibración de respuesta no-lineal del fotodiodo de *TPA* G1115 respecto a la del fotodiodo lineal. El ajuste de la respuesta ajuste (rojo)  $S = 0,4I^{2,2}$ , esencialmente cuadrático.

Para comprobar su funcionamiento se ha realizado una curva de calibración de la respuesta del fotodiodo con la energía de irradiación. La energía del pulso se ha medido mediante un fotodiodo de silicio (DET110 *Thorlabs*). En la medida se ha utilizado un sistema experimental similar al mostrado en la Figura 5.1, página 87. Podemos ver cómo la respuesta es esencialmente cuadrática, siendo su ajuste a la curva  $S = 0,4I^{2,2}$ .

<sup>72</sup>Fosfuro de Arsenio-Galio

### 5.3.1.b. Optimización de TPA con pulsos expandidos en el amplificador

La expansión temporal de los pulsos se realiza mediante el desajuste de la red de difracción del compresor situado en el amplificador<sup>73</sup> en ambas direcciones, introduciendo trino<sup>74</sup> de diferente signo.

El montaje experimental utilizado se puede observar en la Figura 5.18. El haz procedente del amplificador es manipulado espectralmente en el sintetizador y se realiza la detección de la fotocorriente inducida en el fotodiodo de *TPA*. Un espejo abatible permite la inserción del pulso conformado en el sistema *FROG* para su caracterización.

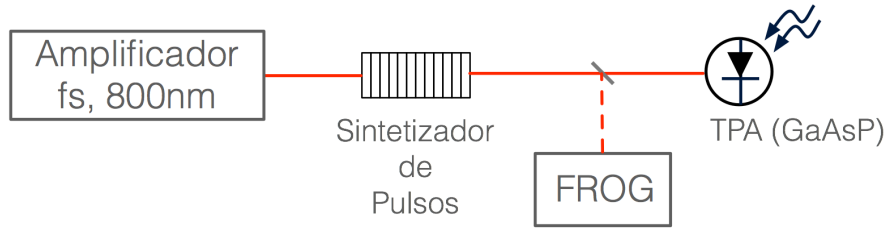


Figura 5.18: Sistema experimental para la compresión de pulsos expandidos en el amplificador

*MODS* ha sido configurado como *MODS/50/3-1-1*, 3 barridos, 1 saltos de búsqueda en el primero y 1 en los siguientes (451 evaluaciones en total), utilizando 50 nodos distribuidos a lo largo de todo el *SLM* y utilizado optimización de costo. Se han utilizado diferentes tipos de fase inicial y barrido, como veremos a continuación.

En la Figura 5.19 se muestran las trazas de *FROG* de los pulsos inicial y optimizado, así como las curvas de convergencia obtenidas. En las trazas de *FROG* se han añadido las señales temporales integradas (línea azul) correspondientes a la autocorrelación de tercer orden del pulso. En las trazas del pulso optimizado se incluye como referencia la señal temporal integrada correspondiente al pulso por transformada del amplificador (línea roja punteada) que presenta una duración de 230 fs *FWHM*. Esta señal integrada corresponde a la señal de autocorrelación de tercer orden de un pulso con 190 fs *FWHM*, asumiendo un factor de autocorrelación de tercer orden de 1.22 [80]. Como se ha comentado en la sección 3.3, este sintetizador tenía un problema de ensanchamiento temporal, de hay que el pulso por transformada que ofrece tenga esta duración. Las curvas de convergencia, mostradas a la derecha, están formadas por las mejores evaluaciones de cada una de las optimizaciones individuales, se señalan

<sup>73</sup> Los detalles del amplificador regenerativo se dan en la página 29

<sup>74</sup> Fase cuadrática

las evaluaciones correspondientes a cada uno de los barridos realizados. Las fases obtenidas pueden observarse en la Figura 5.20.

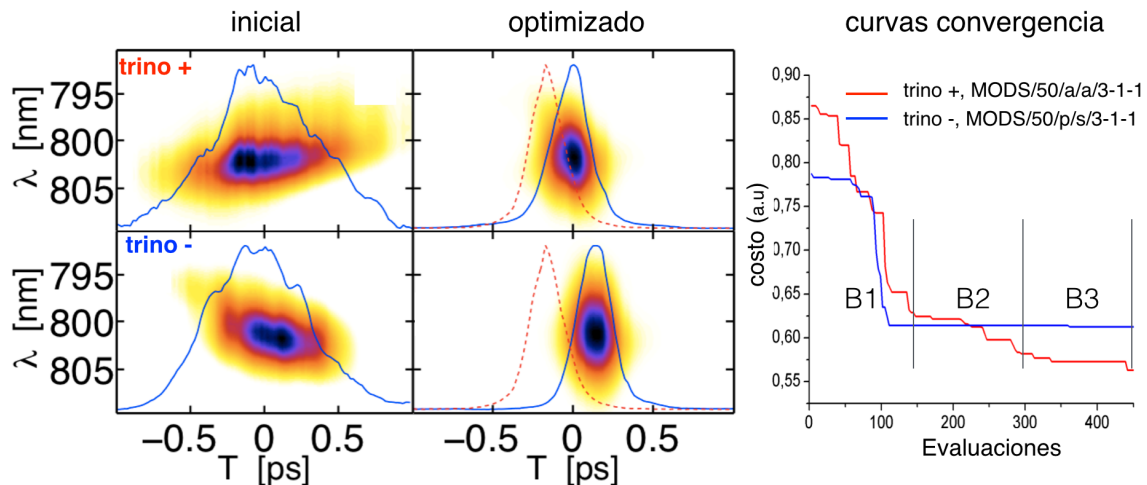


Figura 5.19: Trazas de *FROG* de los pulsos iniciales, con trino de diferente signo, pulso optimizado y curvas de convergencia. Se muestra traza integrada (autocorrelación de tercer orden) de *FROG* (azul) y la correspondiente a un pulso comprimido del amplificador (rojo discontinua).

En ambos casos se ha logrado compensar el trino introducido llevando al pulso a un valor próximo al del pulso por transformada.

La introducción de trino en el espectro genera el desplazamiento temporal lineal de unas frecuencias frente a otras, generando trazas iniciales en las que podemos ver claramente cómo es la distribución resultante de las frecuencias frente al tiempo, que presentan diferente pendiente dependiente del tipo de trino. Tras la optimización los pulsos los pulsos obtenidos no presentan signos apreciables de trino residual.

La traza de *FROG* del pulso inicial con trino positivo nos muestra una expansión temporal hasta los 800 fs *FWHM*, la compresión alcanza 260 fs *FWHM*, que corresponde a un pulso de 213 fs *FWHM*. En esta optimización *MODS* utiliza como punto de partida una fase con valores aleatorios distribuidos uniformemente en el intervalo  $[0, 2\pi)$  y un barrido aleatorio. En la curva de convergencia (rojo) observamos el comportamiento típico de este tipo de barrido. No existe una posición preferencial de optimización, estando las contribuciones a la mejora de señal distribuidas a lo largo de los tres barridos.

En el pulso expandido con trino negativo la expansión temporal alcanza los 720 fs *FWHM*, con una compresión resultante de 250 fs *FWHM*, correspondiente a un pulso de 205 fs *FWHM*. En esta ocasión *MODS* utiliza una fase inicial constante con valor de  $\pi$  radianes con recorrido secuencial. cómo se puede apreciar en la curva

de convergencia (azul), la optimización sólo se produce durante el primer barrido, con la evolución esperada para el barrido secuencial, relativa a la energía asociada al espectro. En el resto de los barridos no se logra mejora alguna. Se observa asimismo un desplazamiento temporal de la señal optimizada. No hay ningún condicionamiento de anclaje temporal en la optimización por lo que la solución puede existir en cualquier punto dentro de la ventana de control del pulse shaper [37]. Es la consecuencia de la multimodalidad de orden 1 que vimos en el capítulo 4.2.7.

La diferencia de comportamiento entre ambas convergencias creemos que está asociada al ruido de modulación de amplitud y no a problemas derivados del punto de partida en el espacio de soluciones ni al tipo de barrido utilizado. Al utilizar una fase aleatoria inicial no sólo se produce una dispersión temporal de la energía del pulso (fig. 4.14), sino que aparecen, en mayor o menos medida, los efectos de atenuación espectrales vistos en el capítulo 5.1.3. De esta forma la atenuación espectral producida cuando se efectúa la exploración de cada nodo queda *camuflada* entre la atenuación general introducida, pudiendo percibirse sus efectos asociados de modificación temporal. También se aprecia en la curva de convergencia cómo su valor de costo inicial es peor que el de fase plana. Cuando el punto de partida es una fase plana la detección de mejoras temporales en la señal se produce sólo cuando el nivel de la perturbación por modulación de amplitud es inferior al incremento de señal por la estructuración temporal, esto sucede solo en los primeros estadios de la optimización.

Aun así, la compresión alcanzada es similar en ambos casos, mostrando una duración en el pulso resultante ligeramente superior al de referencia (23 fs y 15 fs *FWHM*), que podemos considerar que queda dentro del error de la medida de *FROG*, puesto que se ha utilizado una resolución temporal de 20 fs en la adquisición de la traza.

Aplicando los algoritmos de recuperación de fase a las trazas de *FROG* obtenidas podemos reconstruir la fase que poseen los pulsos antes y después de la optimización. En la Figura 5.20 podemos ver las fases recuperadas de los pulsos iniciales y finales, así como las fases de compensación aplicadas por *MODS*.

Podemos observar cómo las fases de los pulsos iniciales se corresponden con fases cuadrática de diferente signo, correspondientes a los diferentes desajustes del compresor del amplificador. La fase obtenida presenta una curvatura contraria, de forma que su adición a la fase residual del espectro nos ofrece una fase esencialmente plana. El efecto de no ajuste de fase se observa claramente en el caso de trino negativo. Recordemos que esta fase se inicializada en  $\pi$  rad. El ajuste de fases está sometido a los efectos que hemos visto en la Figura 5.6, página 93, en la que se muestra el efecto de modulación de amplitud al modificar un sólo nodo (aunque esta perturbación se ha conseguido llevar a valores inferiores a los observados en la Figura 5.6). El efecto neto es que, excepto en cierta áreas, el resultado de la modificación de un nodo sobre la fase genera una pérdida de energía en el haz menor al incremento producido por la compresión, imposibilitando la optimización.

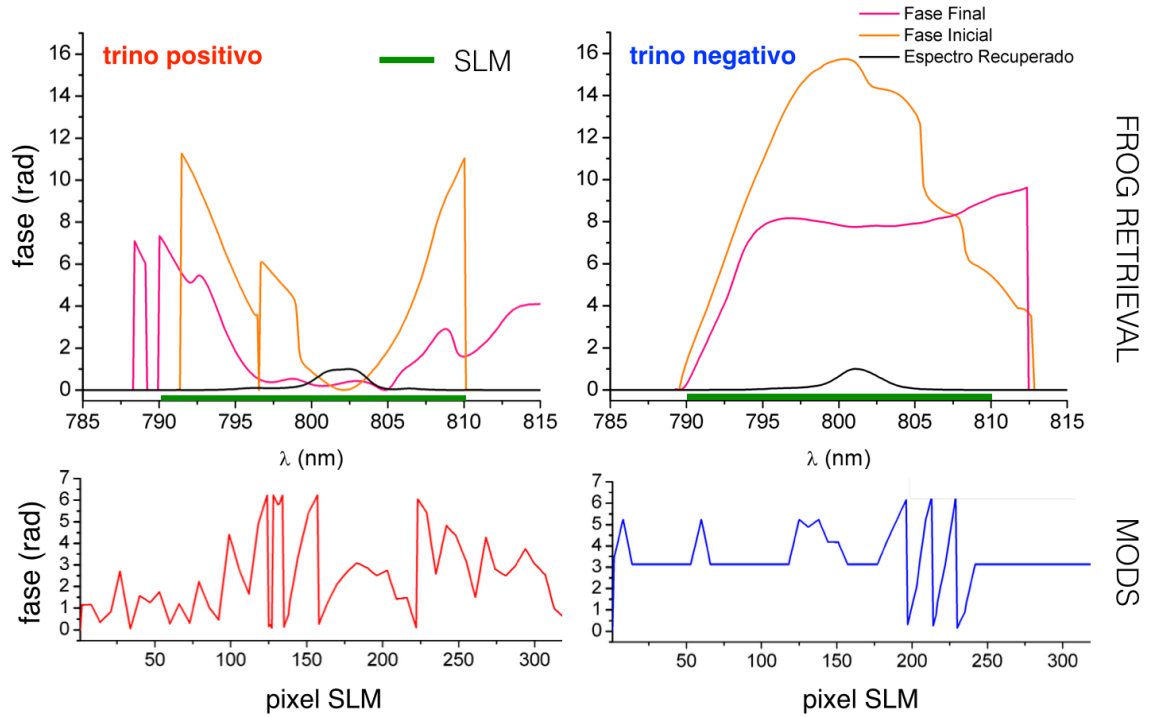


Figura 5.20: Fases recuperada a partir de las trazas de FROG de los pulsos expandidos y comprimidos y fases de compensación obtenidas. La línea verde horizontal indica la posición del *SLM* frente a las fases recuperadas.

### 5.3.1.c. Optimización de *TPA* pulsos distorsionados mediante ruptura dieléctrica en aire

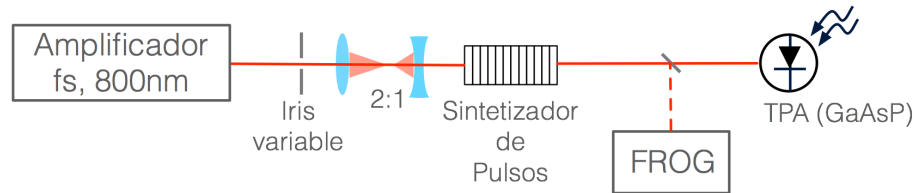


Figura 5.21: Sistema experimental utilizado para la compresión de pulsos distorsionados mediante plasma en aire. La ruptura dieléctrica se genera utilizando un telescopio 2:1 previo al sintetizador de pulsos. El control de la energía del pulso se realiza mediante un iris de apertura variable.

En el ejemplo anterior la duración del pulso inicial se ha aumentado mediante un mecanismo lineal cómo es la introducción de trino mediante el desajuste de la etapa

de compresión del amplificador. En este caso la distorsión del perfil temporal del pulso se realiza a través de un mecanismo no-lineal. Producimos ruptura dieléctrica en el aire. Al enfocar el pulso suficientemente en aire se producen mecanismos de absorción multifotónica, formación de plasma y automodulación de fase que distorsionan su perfil temporal de intensidades [81]

El esquema básico utilizado en el experimento se muestra en la Figura 5.21. El pulso de salida del amplificador, esta vez comprimido a su mínima duración de  $\approx 130$  fs *FWHM* atraviesa un telescopio (2:1) en cuyo foco la densidad de potencia alcanzada es suficiente para inducir ruptura dieléctrica por absorción multifotónica (en el aire), lo que genera distorsiones temporales en el pulso. La energía del pulso y por tanto la ruptura dieléctrica, se controla mediante una apertura variable previa al telescopio. En todos los casos se ha mantenido la energía por debajo del límite para la generación de luz blanca [82] [83]. Al estar la fuente de distorsión situada antes del sintetizador de pulsos, la generación de luz blanca no sólo implicaría la distorsión temporal, sino el bombeo de energía hacia longitudes de onda que quedarían fuera de las especificaciones sintetizador, haciendo imposible su recuperación temporal.

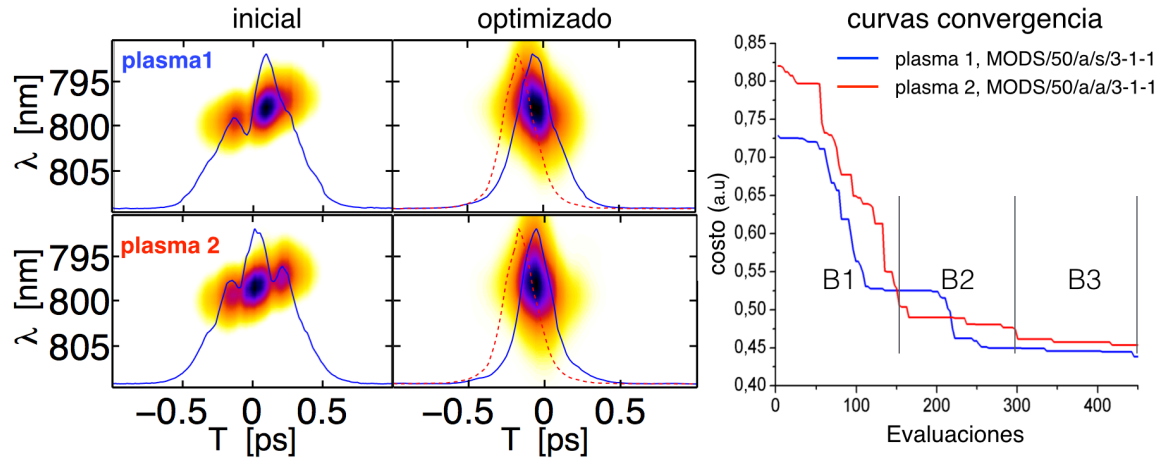


Figura 5.22: Trazas de FROG de los pulsos iniciales bajo diferentes condiciones de generación de plasma (plasma1, plasma 2), pulso optimizado y curvas de convergencia. Se muestra la energía temporal integrada de las trazas de FROG (traza azul) y la correspondiente a un pulso comprimido del amplificador (traza roja discontinua). Curvas de convergencia asociadas a ambas optimizaciones

Mediante dos aperturas diferentes del iris variable se han generado los pulsos temporalmente distorsionados que se muestran en la Figura 5.22, denominados *plasma1* y *plasma2*. Se muestran, asimismo, las curvas de convergencia obtenidas. La señal temporal integrada de la traza se muestra cómo una línea azul. En esta ocasión los



pulsos no sufren una expansión temporal tan acusada cómo en el anterior, pero sí podemos ver cómo se produce una estructuración temporal diferente en ambos casos. Podemos apreciar cómo se observa una clara distorsión en la distribución espectral de frecuencias.

En ambas configuraciones la anchura temporal alcanzada cómo consecuencia de la distorsión no-lineal es de aproximadamente 500 fs *FWHM*, siendo difícil realizar una estimación precisa debido a la estructuración anteriormente mencionada. Después de la optimización en ambos casos se consigue una reducción temporal cercana al óptimo, presentando trazas de autocorrelación de 280 fs en el caso de *plasma 1* y 250 fs en el de *plasma 2*. En ambos casos se observa un ensanchamiento espectral aparente en las trazas optimizadas. Esto es debido a los diferentes rangos de energía en los que hay que situar el sistema FROG para la detección, pero entendemos que es un artefacto de medida.

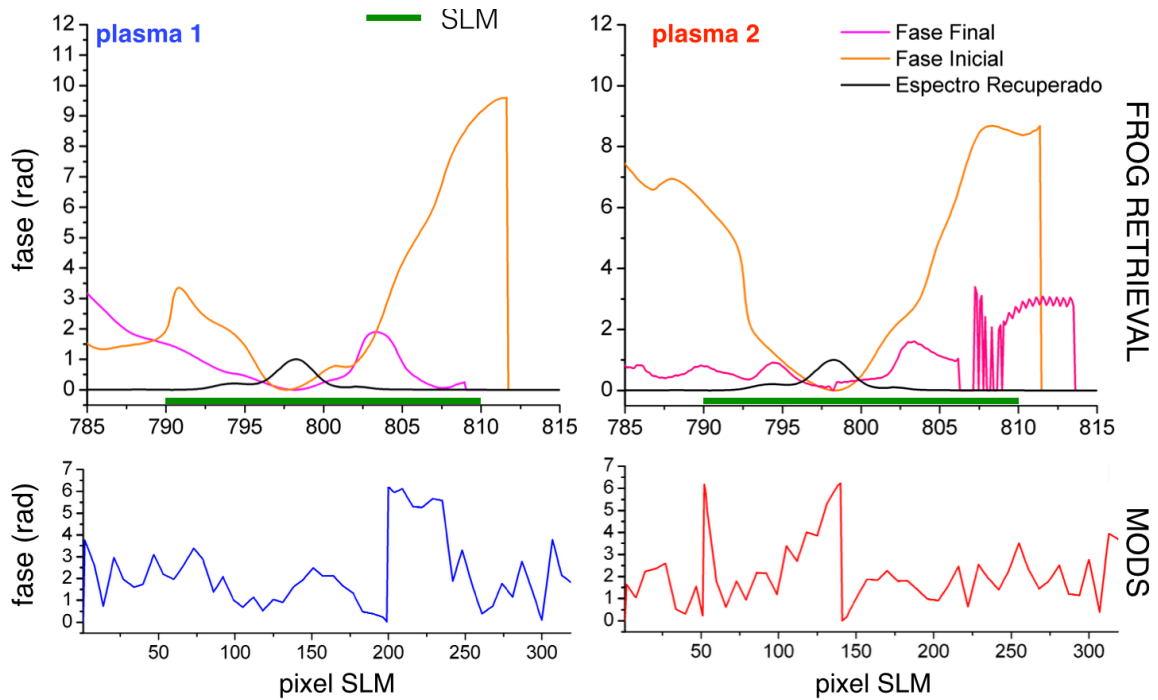


Figura 5.23: Fases recuperada a partir de las trazas de FROG de los pulsos expandidos y comprimidos y fases de compensación obtenidas.

La configuración para la optimización en el caso de *plasma 1* es *MODS/50/a/s/3-1-1*, para *plasma 2* se utiliza *MODS/50/a/a/3-1-1*. En ambos casos se inicializa la fase de forma aleatoria con una distribución uniforme en el rango  $[0 - 2\pi)$ .

En el comportamiento de las curvas de convergencia se ve reflejado el tipo de barrido utilizado. En el caso de *plasma 1* (secuencial) la curva muestra una forma

sigmoidal. En el de *plasma 2* (aleatorio), la contribución a la optimización se encuentra distribuida a lo largo de todo el barrido. En ambos casos se consigue mejorar la señal en todos los barridos.

Las fases obtenidas, así como las fases recuperadas a partir de las trazas de *FROG* se muestran en la Figura 5.23. Nuevamente, estas fases recuperadas hay que entenderlas de forma cualitativa. Se observa cómo la generación de plasma se traduce en un chirp positivo sobre el espectro, con una cierta modulación. Las fases obtenidas por *MODS* en ambos casos corresponden a fases de compensación de signo inverso.

### 5.3.2. Generación de Segundo Armónico en la nano-escala

La generación de segundo armónico (SHG) emitida por un cristal no lineal ha sido ampliamente usada como método de compresión de pulso láser ultracortos ya que la señal de  $SHG \propto \int |E(t)|^4 dt$  y por lo tanto nos proporciona una medida efectiva de la compresión del pulso. Veamos, someramente, cual es el mecanismo subyacente en el proceso [84].

Cuando el campo electromagnético  $E$  se propaga por un medio ejerce una fuerza sobre los electrones exteriores de los átomos débilmente ligados. En un medio lineal isótropo la polarización eléctrica resultante es paralela y directamente proporcional al campo aplicado. Si consideramos un campo armónico podemos expresar la polarización  $P = \epsilon_0 \chi E$ , donde  $\chi$  es la susceptibilidad eléctrica del medio y  $\epsilon_0$  su constante dieléctrica. Estas dos componentes,  $P$  y  $E$ , tienen una relación lineal. como vimos en el capítulo de *Fundamentos*, si la energía del campo  $E$  posee la intensidad suficiente, aparecen términos anarmónicos en la respuesta óptica, por lo que la polarización en régimen no lineal se expresa mediante un desarrollo en serie:

$$P = \epsilon_0(\chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 + \dots) \quad (5.3)$$

donde los términos no lineales  $\chi^{(2)}, \chi^{(3)}, \dots \ll \chi^{(1)}$ .

Si consideramos  $E$  en la forma  $E = E_0 \sin(\omega t)$  la polarización resultante sería

$$P = \epsilon_0(\chi E_0 \sin(\omega t) + \chi^{(2)} E_0^2 \sin^2(\omega t) + \chi^{(3)} E_0^3 \sin^3(\omega t) + \dots) \quad (5.4)$$

que podemos expresar cómo

$$P = \epsilon_0 \chi E_0 \sin(\omega t) + \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} E_0^2 (1 - \cos(2\omega t)) + \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} E_0^3 (3 \sin(\omega t) - \sin(3\omega t)) + \dots \quad (5.5)$$

Es decir, a medida que el campo atraviesa el medio isótropo la onda crea una onda de polarización que se propaga por el medio con términos armónicos de orden superior.

El término  $\cos(2\omega t)$  de la ecuación 5.5 corresponde a una onda de polarización eléctrica con el doble de la frecuencia incidente. Aparece en la luz reradiada por los osciladores en régimen armónico que genera el campo sobre los electrones. Esta componente es, precisamente, la Generación de Segundo Armónico (*SHG*).

A medida que el campo se propaga por el material los átomos del mismo generan nuevas ondas a la frecuencia  $2\omega$ , que se encontraran desfasados, interfieren entre ellos debido a la diferente velocidad de propagación de la onda de frecuencia  $2\omega$  frente a la fundamental  $\omega$ . como consecuencia, la eficiencia de generación será máxima si el espesor del material tiene la denominada *longitud de coherencia*, que es del orden de  $\approx 20\lambda_0$ . La descripción de la generación se ha realizado en condiciones alejadas del ajuste de fase (*phase matching*). Para una descripción detallada de las condiciones de ajuste de fase ver [38]. Existen ademas dependencias del tensor  $\chi^{(2)}$  con la simetría del medio. La orientación del campo y de su polarización frente al medio de generación es crítica, en cualquier caso, la generación de armónicos ópticos es rutinaria en los laboratorios.

En este experimento hemos realizado la optimización de *SHG* sobre nanocristales (*NC*) de  $BaTiO_3$ , típicamente de 200 nm. Al ser de un tamaño inferior a la longitud de onda incidente, 800 nm, y a la de coherencia, los efectos de *phase matching* no son críticos [85].

### 5.3.2.a. Descripción experimental

Estos experimentos han sido realizados en el *ICFO*<sup>75</sup> con un sistema laser y sintetizador de pulsos diferente a los descritos en la sección 3. Podemos verlo esquemáticamente en la Figura 5.24<sup>76</sup>.

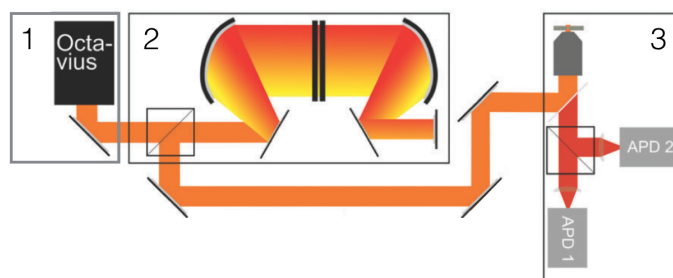


Figura 5.24: Sistema de experimental utilizado en la optimización de *SHG* sobre nanocristales. Fuente láser (1), sintetizador de pulsos (2), microscopio confocal (3)

<sup>75</sup>Institut de Ciències Fotòniques

<sup>76</sup>Figura adaptada de [86]

El sistema experimental consiste en un sistema láser Ti:Zafiro (*Octavius 85M Menlo Systems*) con una longitud de onda central de  $\approx 799\text{nm}$  con un ancho de banda de  $\approx 90\text{nm}$  al 30% del máximo, que proporciona pulsos de hasta 7fs. La frecuencia de repetición es de 85 MHz, con una potencia promedio de 1 mW. El sistema de conformación temporal es un sistema 4f con un *SLM* de 640 pixeles configurado en doble paso<sup>77</sup>. El sistema de irradiación y adquisición de señal de SH consiste en un microscopio confocal invertido con un objetivo de microscopio con apertura numérica  $\text{NA}=1.3$  (*Fluar, Zeiss*) que permite enfocar el haz hasta el límite de difracción. La muestra con los *NCs* de  $\text{BaTiO}_3$  esta montada en una base translacional piezoeléctrica (*MadCityLabs*) con precisión de nanómetros. La señal de *SH* es recogida en reflexión a través del mismo objetivo y medida mediante un fotodiodo de avalancha (*APD, Perkin-Elmer*). Las medidas espectrales se realizan con un espectrógrafo (*Shamrock Sr-303i*) equipado con una cámara emCCD<sup>78</sup> (*Andor iXon*).

En la Figura 5.25 se muestra el espectro del láser utilizado, no es gaussiano teniendo dos picos espectrales predominantes en  $\approx 790\text{ nm}$  y  $\approx 830\text{ nm}$ . Asimismo se muestra la fase residual natural (rojo discontinuo) que posee y la fase que presenta una vez se ha realizado su optimización mediante *MIIPS* [4].

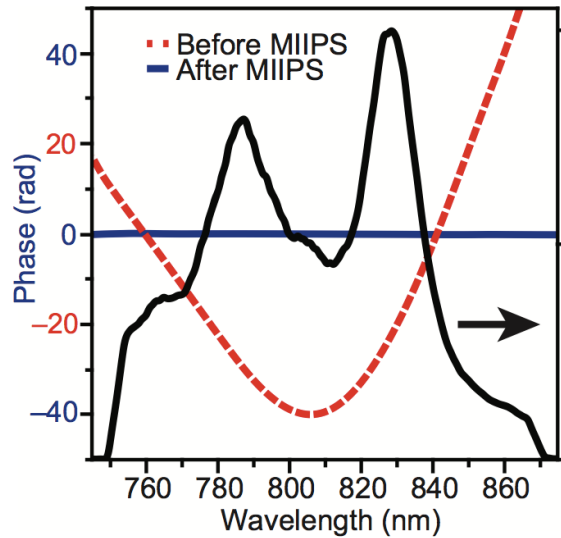


Figura 5.25: Espectro de salida del sistema láser utilizado (negro), junto con su fase residual (rojo discontinuo) y la fase que presenta una vez se ha optimizado mediante *MIIPS* [4]

En los experimentos se han utilizado nanocristales con una tamaños de  $\approx 250\text{ nm}$ ,

<sup>77</sup>Adaptado de MIIPS, Biophotonics Solutions, Inc.

<sup>78</sup>electron-multiplying charge-coupled device

depositados sobre un portaobjetos de microscopio de  $150\mu m$  de espesor. En la Figura 5.26 se muestran nanocristales de  $BaTiO_3$  similares a los utilizadas.

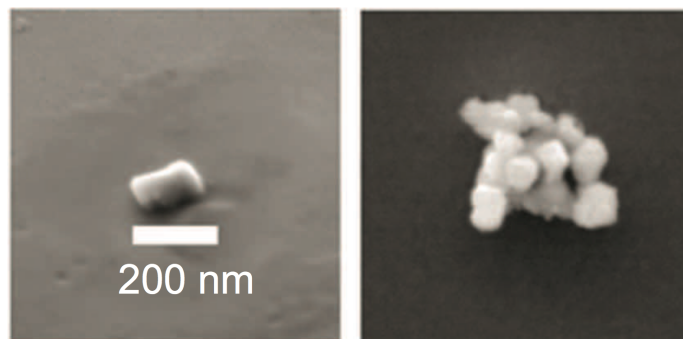


Figura 5.26: Nanocristales de  $BaTiO_3$  similares a los utilizados en la optimización de *SHG*. Imágenes de microscopio electrónico de barrido.

Los resultados experimentales que se muestran son parte de un estudio de viabilidad de aplicación de *MODS* en la nanoescala sobre el sistema experimental descrito. El objetivo real de la utilización de *MODS* es poder encontrar pulsos optimizados de excitación en experimentos de fluorescencia en *single molecule*, sobre una molécula denominada *DiNaphtho-Quaterrylenebis (Dicarbox-Imide)*, o *DN-QDI* [87]. Dicha molécula sufre de blanqueo de fluorescencia [88], un problema común en los experimentos de fluorescencia sobre moléculas, asociado normalmente a la fotólisis del cromóforo receptor de la radiación y responsable del comportamiento fluorescente. Bajo las condiciones actuales de irradiación presentan tiempos de vida de entre 2 y 10 minutos antes de volverse inactivas. Estos tiempos de vida hacen inviable la aplicación en esta optimización de algoritmos evolutivos, o del propio algoritmo de optimización de MIIPS<sup>79</sup>. Por lo tanto, contar con un mecanismo de optimización rápido para encontrar pulsos adecuados de excitación es fundamental.

### 5.3.2.b. Resultados experimentales

Se muestran a continuación dos resultados experimentales que avalan la viabilidad del uso de *MODS* en la nanoescala. Sobre los datos experimentales se ha superpuesto la imagen de microscopía óptica confocal, correspondiente a un área de  $50 \times 50 \mu m$ , señalando (circulo blanco) el nanocrystal en el que se ha realizado la optimización.

El primero de ellos se muestra en la Figura 5.27. Se realiza sobre un nanocrystal de  $\approx 200nm$  utilizando *MODS/100/a/s/3-3-3*, con inicialización de la fase en el rango  $[0, 2\pi)$  y optimización de mérito. La optimización requiere 1501 evaluaciones, unas 500 evaluaciones por barrido. El tiempo de adquisición por muestra es de  $\approx 400ms$ ,

<sup>79</sup>invierte del orden de 15 a 20 minutos en lograr la convergencia

lo que proporciona un tiempo de adquisición total de  $\approx 10$  minutos. En la curva de optimización se muestran todas las evaluaciones realizadas. Se logra optimizar en el primer y segundo barrido, alcanzando un valor sobre la lectura del *APD* 6 veces superior al inicial. Durante el tercer barrido la señal decae ligeramente, este decaimiento probablemente esté relacionado con la fluctuación en energía del sistema láser.

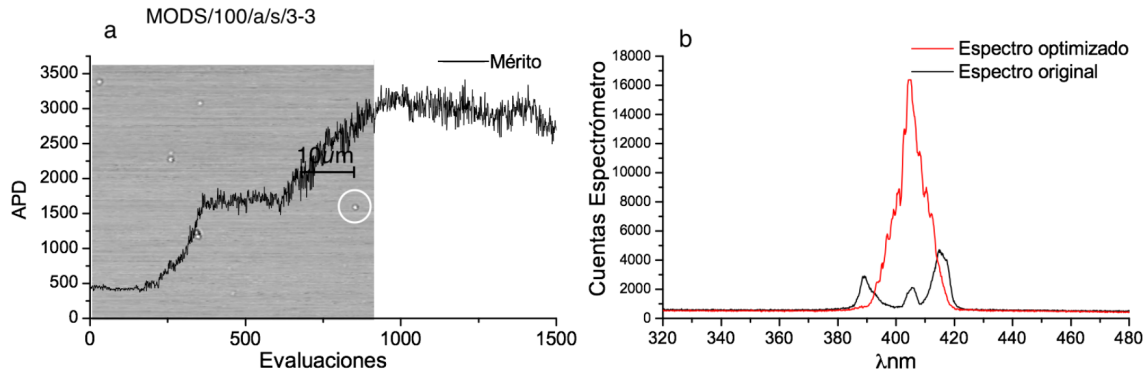


Figura 5.27: Curva de optimización e imagen confocal (a), del *NC* sujeto de la optimización de *SH NC* (circulo blanco). Espectro original y espectro después de la optimización (b).

En la Figura 5.27.b vemos el espectro original del pulso sin optimizar (negro), en el que se aprecian tres picos de emisión en el entorno de los 400 nm. Esto es debido al espectro de excitación (fig 5.25) que dan lugar a los picos de emisión de *SH* observados para la emisión no optimizada, situados en  $\approx 390$  nm y  $\approx 415$  nm. El espectro una vez optimizado el espectro (rojo) presenta un solo pico predominante de emisión centrado en los 410 nm. Se ha conseguido triplicar la emisión integrada (380 nm - 420 nm).

Una vez maximizada la señal de *SH* se ha cargado la fase obtenida en el *SLM* y se ha medido la fase final en el pulso láser mediante *MIIPS*. El resultado se muestra en la Figura 5.28, donde podemos ver la máscara de fases cargada y la fase resultante en el pulso, junto con una línea de guía sobre la fase del pulso.

La fase de optimización obtenida es esencialmente una fase cuadrática con cierto nivel irregularidad, que compensa la fase residual del pulso que se observa en la Figura 5.25. La fase del pulso conformado presenta una dependencia lineal. Al igual que ocurría en los anteriores experimentos, esta optimización no tienen ninguna restricción respecto a la ubicación temporal del pulso. Esta componente lineal se traduce en un desplazamiento temporal, no afectando a su duración. Básicamente es una fase plana que nos indica una compresión del pulso cercana a su límite por transformada.

Finalmente en la Figura 5.29 se ilustra el proceso de optimización sobre nanocristales de un tamaño estimado  $\approx 250$  nm. Esta optimización se ha realizado después de una

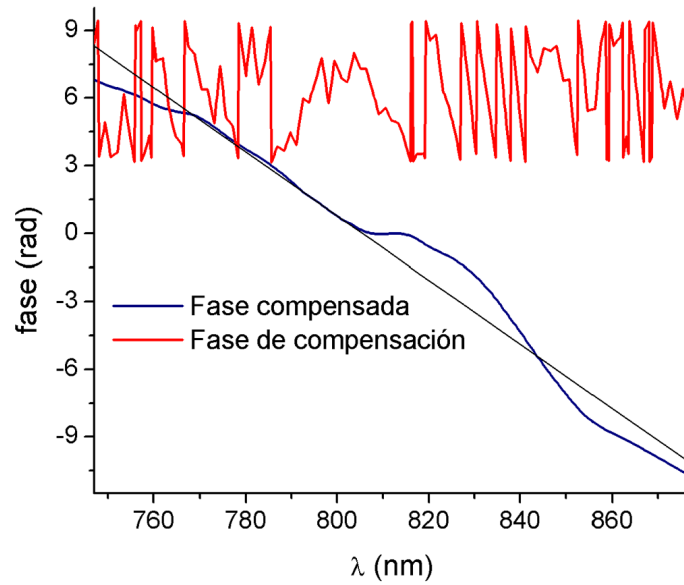


Figura 5.28: Fase de compensación (rojo) y fase del pulso (azul) una vez aplicada la fase de compensación. Se ha incluido una guía visual sobre la fase residual resultante, que es básicamente una fase plana con cierta pendiente, indicativa de un desplazamiento temporal del pulso.

optimización de alineación del sistema, lo que nos permite utilizar, *MODS/100/a/s/1-3* (501 evaluaciones) con lo el tiempo de optimización se reduce a  $\approx 3$  minutos. Se obtiene un incremento de intensidad de señal en el APD superior a 9 veces, respecto al pulso sin optimizar.

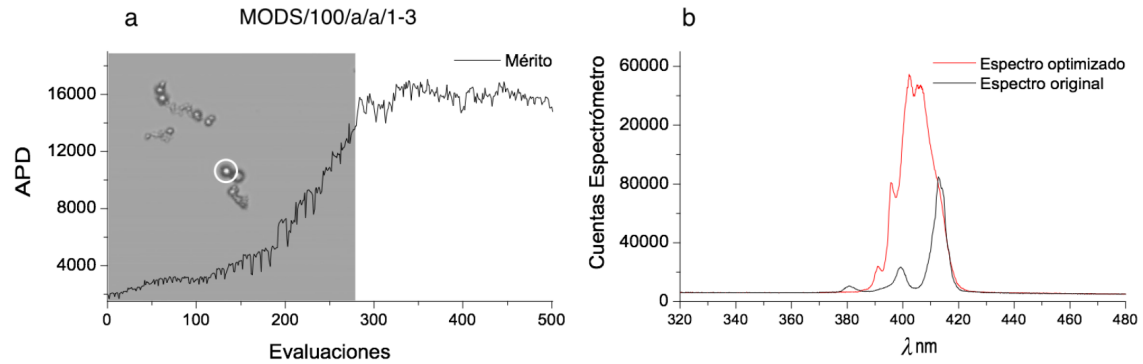


Figura 5.29: Curva de optimización e imagen confocal (a) del *NC* sujeto de la optimización de *SH*. Espectro original y espectro después de la optimización (b).

Espectralmente vemos el espectro de emisión inicial presenta emisión en diferentes

frecuencias con diferentes intensidades. Esto es achacable a la existencia de cierto *trino espacial*<sup>80</sup>, por ello la generación inicial observada es diferente a la mostrada en el ejemplo de la Figura 5.27. En el espectro optimizado aparecen nuevos picos de emisión de *SH*, al igual que en el caso anterior, la emisión integrada optimizada triplica a la original.

### 5.3.3. Conclusiones

Se ha comprobado la capacidad de *MODS* para realizar la optimización de procesos no-lineales de tercer orden (*TPA*) con pulsos sometidos a distorsión temporal con dos orígenes diferentes. El primero de ellos es la introducción de trino (fase espectral cuadrática), de diferentes signos, mediante descompensación de la etapa de compresión del amplificador. El segundo es la distorsión temporal generada mediante mecanismos de ruptura dieléctrica en aire, fenómeno que implica una estructuración de fase espectral mas compleja que el trino. En ambos casos se ha logrado realizar una compensación de las distorsiones de fase existentes en el pulso hasta llevarlo hasta valores cercanos a su límite por transformada. Todo ello se ha realizado optimizando 50 variables en tan solo 451 mediciones del efecto estudiado, esto es, menos de 10 evaluaciones por dimensión. Hemos visto tambien como la selección del punto de partida es importante, fundamentalmente por la presencia de ruido experimental, resultando mas efectivo partir desde una fase aleatoria.

Asimismo se ha comprobado la viabilidad de la aplicación de *MODS* en la nanoescala, utilizado para ello la señal de *SH* (efecto no-lineal de segundo orden) proveniente de nano partículas de  $BaTiO_3$  con un tamaño inferior a la longitud de onda de irradiación. El reducido número de evaluaciones necesarias, abre la posibilidad de su aplicación muestras fluorescente con tiempo de irradiación limitado.

---

<sup>80</sup>La distribución de las frecuencias en el foco del haz láser no es uniforme



## 5.4. Alineamiento molecular

El objetivo de esta sección es analizar la viabilidad de *MODS* en experimentos de alineamiento molecular. La modelización teórica de este experimento queda mas allá del objeto de esta tesis, por lo que en esta sección esbozaremos las principales características del alineamiento molecular y mostraremos resultados experimentales aplicados a el alineamiento molecular de  $N_2$  atmosférico. Los resultados avalan la viabilidad de uso de *MODS* en este tipo de problemas.

Cuando moléculas con polarizabilidad anisotrópica son sometidas al campo electromagnético de un pulso láser intenso se alinean respecto al eje de polarización del campo aplicado. Este proceso puede ser clasificado de dos posibles modos:

- **Adiabático** Sucede cuando la envolvente del campo de alineamiento cambia lentamente en comparación con la escala de tiempo característica del momento rotacional de la molécula alineada. En este caso, una vez desaparece el campo de alineamiento el alineamiento también lo hace [89].
- **No adiabático** Cuando la duración del pulso de alineamiento es mucho mas corta que el periodo rotacional. En estas condiciones se genera un paquete de ondas de estados rotacionales que permanece aún cuando la excitación desaparece, generando alineamiento recurrente en fracciones y múltiplos enteros del periodo rotacional [90].

Este último tipo de alineamiento es el que es accesible en nuestros experimentos, dada la naturaleza de nuestro pulso de excitación.

En ausencia de excitación, las moléculas tienen una orientación aleatoria. En presencia de un pulso láser intenso, se induce en ellas un dipolo en la dirección de la polarización del campo. De esta forma se genera un par de rotación en la molécula, que hace que el dipolo minimice su energía en el campo alineandose paralelamente al eje de polarización del campo  $E(t)$ . Al ser la duración del pulso de excitación menor que el periodo rotacional de la molécula, esta recibe un rápido impulso de alineamiento, creandose en la molécula un paquete de ondas rotacional. Una vez que el pulso se ha extinguido, alineaciones y antialineaciones periódicas transitorias se suceden después del alineamiento inicial, que seguirán produciendose mientras se mantenga la coherencia de los paquetes de onda rotacionales [59]. A este fenómeno se le denomina alineamiento libre de campo<sup>81</sup>, los instantes de alineamiento y de antialineamiento están muy próximos en el tiempo.

La evolución del paquete de ondas rotacional tiene una periodicidad determinada por su *tiempo de recurrencia*,  $T_{rec} = \frac{\pi\hbar}{B}$ , siendo  $B$  la constante rotacional de la molécula. En nuestro caso realizaremos optimización de alineamiento en aire, sobre

---

<sup>81</sup>field-free alignment

la molécula de  $N_2$ ,  $B = 1,989581 cm^{-1}$  [28]. Existen, asimismo, alineaciones parciales observables en  $\frac{T_{rec}}{2}$ ,  $\frac{T_{rec}}{4}$  y  $T_{rec}\frac{3}{4}$ . El alineamiento es una fuente de birrefringencia, que mediremos de forma analoga a cómo se realiza la medición en *FROG*.

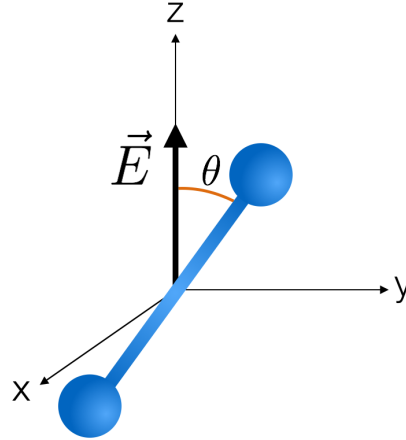


Figura 5.30: Esquema del ángulo  $\theta$  entre el eje de polarización del campo  $\vec{E}$  y la molécula diatómica.

La medida del alineamiento está definida por el valor promedio del valor del  $\langle \cos^2 \theta \rangle$  donde  $\theta$  es el ángulo entre el plano de polarización del láser y el eje molecular (fig 5.30). Esta medida nos proporciona un valor de  $\langle \cos^2 \theta \rangle = 1$  ( $\theta = [0, \pi]$ ) para una distribución angular perfectamente alineada o  $\langle \cos^2 \theta \rangle = 0$  ( $\theta = \pm \pi/2$ ) para una distribución en antialineamiento. En los intervalos entre las alineaciones recurrentes existirá una distribución isotrópica de todos los valores posibles de  $\theta$ , por lo que  $\langle \cos^2 \theta \rangle = 1/3$ .

Basados en esto consideraremos que cuando el  $\langle \cos^2 \theta \rangle > 1/3$  las moléculas están predominantemente alineadas a lo largo del eje de polarización del láser, si el  $\langle \cos^2 \theta \rangle < 1/3$ , las moléculas están predominantemente alineadas en el plano ortogonal al eje de polarización del láser.

En la Figura 5.31 [91] se muestra la señal de alineamiento de las moléculas diatómicas  $N_2, O_2$  ( $B = 1,4456 cm^{-1}$ ) y  $CO$  ( $B = 1,9972 cm^{-1}$ ), que presentan tiempos de recurrencia de  $\approx 8,4$  ps para  $N_2$ ,  $\approx 11,6$  ps para  $O_2$  y  $\approx 8,5$  ps para  $CO$ . La presencia de alineamiento en los tiempos  $\frac{T_{rec}}{4}$ ,  $\frac{T_{rec}}{2}$ ,  $T_{rec}\frac{3}{4}$ ,  $T_{rec}...$  puede apreciarse. Existen diferentes amplitudes en cada una de estas recurrencias dependiendo de la molécula observada, este hecho está relacionado con la estadística de los espines nucleares, que controla los pesos relativos entre los estados  $J$  pares e impares [92].

En nuestro caso, la optimización se realizara sobre la observación del alineamiento inducido en la molécula de  $N_2$ . Esta presenta un tiempo de recurrencia muy similar al del  $CO$ , pero su cantidad relativa en aire es muy diferente,  $\approx 78\%$  para el  $N_2$  frente al  $\approx 0,035\%$  del  $CO$ , con ello podemos considerar despreciable la contribución del

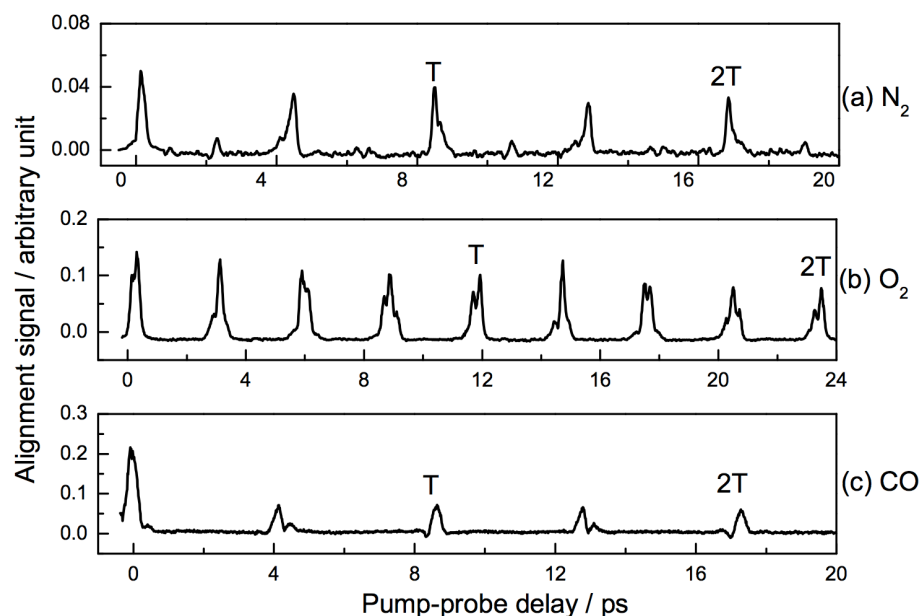


Figura 5.31: Señal de alineamiento para las moléculas diatómicas de  $N_2$  (a),  $O_2$  (b) y  $CO$  (c). El alineamiento ha sido inducido mediante un pulso de 110 fs a 799 nm con una intensidad de  $6 \times 10^{13} W/cm^2$  [5]

*CO*.

En el alineamiento adiabático el uso de estrategias de optimización de conformación temporal con algoritmos evolutivos ha sido ampliamente estudiado [29] [59] [28] [93], utilizando estrategias evolutivas con resultados diversos. No existe un consenso acerca de la conformación temporal óptima para aumentar el alineamiento frente a la producida por un pulso por transformada. Se han reportado soluciones consistentes en trenes de pulsos [29], dobles pulsos [94] o pulsos con dispersión de tercer orden (*TOD*) [28] entre otras.

#### 5.4.1. Descripción experimental

Para la medición del alineamiento molecular utilizamos la configuración experimental mostrada en la Figura 5.32. Utilizamos para ello el mismo sistema experimental que en las medidas de *FROG* con dos pequeñas variaciones:

- Los haces de excitación y muestreo son ahora independientes. El haz de muestreo proviene del amplificador directamente. El haz de excitación proviene de nuestro sintetizador de pulsos y será el encargado de generar el alineamiento
- El medio de interacción es ahora aire (se ha extraído la lámina de *sf-57*). Los

dos haces interactúan en aire a una temperatura<sup>82</sup> de  $21^\circ \pm 3^\circ$

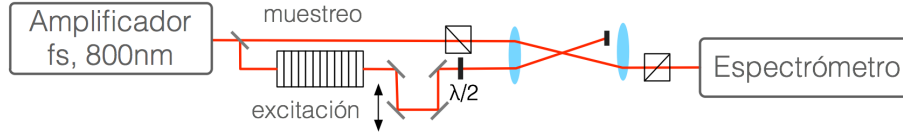


Figura 5.32: Montaje experimental para la generación y medición del alineamiento molecular. La polarización del pulso de muestreo es perturbada por el alineamiento que genera el pulso de excitación. Las polarizaciones de los pulsos de muestreo y excitación están posicionadas a  $45^\circ$ . Estos cambios de polarización son detectados en el espectrómetro.

El objetivo de optimización es maximizar el alineamiento en el  $\frac{T_{rec}}{2}$  de la molécula de  $N_2$ , que ocurre a  $\approx 4,2ps$  del alineamiento inicial. Este tiempo de alineamiento no está influenciado por los momentos rotacionales de otros componentes del aire como  $O_2, CO_2$  o  $CO$ .

La birrefringencia producida por el alineamiento es detectada de forma análoga a la utilizada en las mediciones mediante efecto *Kerr* en *sf-57*, con la diferencia de que en esta ocasión el haz de muestreo ha de ser mucho más débil que el de excitación, esta técnica, conocida como *weak field polarization* [95], permite que el haz de muestreo no interfiera en el grado de alineamiento de las moléculas pero si se vea afectado por la birrefringencia que genera el alineamiento.

Las trazas de alineamiento son registradas modificando la longitud del brazo de excitación, esto es, la distancia temporal entre la excitación y el muestreo, permitiéndonos observar el estado de la rotación molecular en cualquier momento post-excitación<sup>83</sup>.

En la Figura 5.33 se muestra un ejemplo de traza de alineamiento y su señal temporal integrada. El eje horizontal (tiempo) de las figuras crece hacia la derecha. Cada línea vertical de la imagen corresponde a las frecuencias registradas a ese retardo respecto a la excitación. La figura pues corresponde a un mapa temporal de cómo se están produciendo los alineamientos moleculares. Aunque tienen gran parecido visual con las trazas de *FROG* (energía espectral frente al tiempo) en esta ocasión *no* vemos una traza de autocorrelación. La señal detectada es la resultante de la interacción del haz del muestreo con el volumen focal donde se desarrolla el alineamiento molecular. Es consecuencia de la evolución temporal de la birrefringencia inducida por el alineamiento de las moléculas.

<sup>82</sup>Esta es la temperatura estabilizada del laboratorio

<sup>83</sup>Dentro de los límites que nos impone la longitud de nuestra línea de retardo

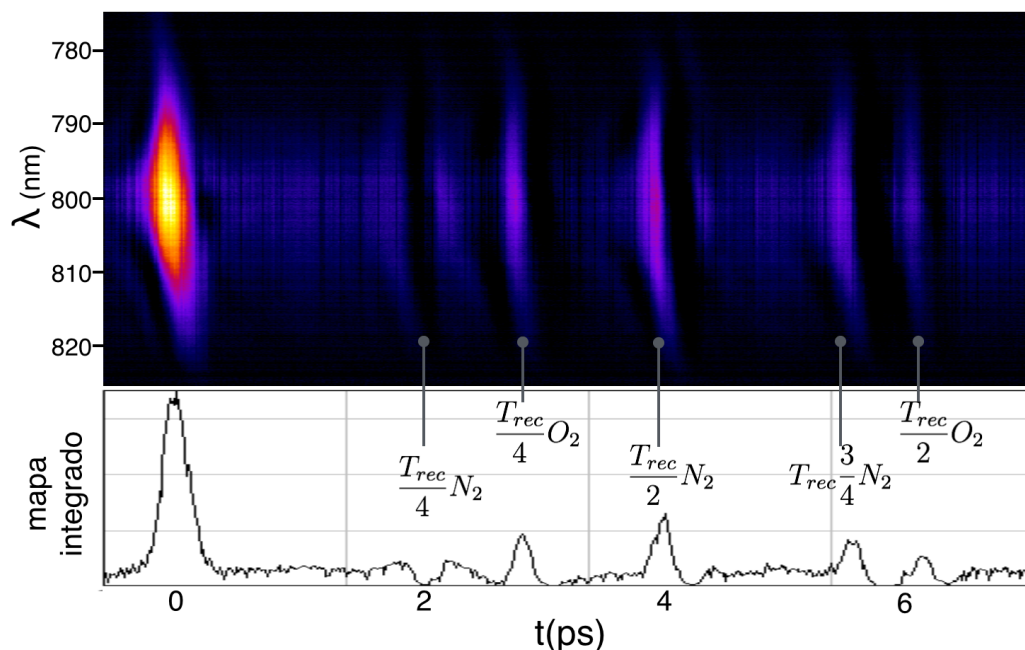


Figura 5.33: Mapa del alineamiento molecular y traza de energía espectral integrada. Se han marcado los diferentes tiempos de recurrencia que se observan para las moléculas de  $N_2$  y  $O_2$

Consideramos  $t = 0$  (tiempo cero) el momento en el que el haz de excitación y el de muestreo coinciden temporalmente. En este punto la señal detectada es significativamente superior a la observada en el resto de la evolución. El pulso genera efecto Kerr en aire cuya detección domina sobre el alineamiento molecular. El efecto Kerr, de origen electrónico, desaparece instantáneamente al extinguirse el pulso de excitación. Posteriormente se observa el fondo de señal producido por la existencia de un cierto grado de alineamiento permanente. Intercalados sobre este fondo de forma regular podemos ver los picos de alineamiento (ascendente) y de antialineamiento (descendente), correspondientes a una detección heterodina de la señal [95]. Se observa cómo, efectivamente, el alineamiento y antialineamiento se suceden inmediatamente en el tiempo.

Los alineamientos y antialineamientos observados son debidos a las moléculas de  $O_2$  y  $N_2$  del aire. La razón para seleccionar el primer  $\frac{T_{rec}}{2}$  del  $N_2$  como objetivo de la optimización es que éste no se encuentra en la proximidad de las recurrencias de las de otras moléculas presentes en el aire, excepto la de  $CO$  cuya contribución se considera despreciable.

### 5.4.2. Resultados experimentales

En los experimentos que mostramos el haz de excitación tiene una energía de 60 mW, el de muestreo de 1 mW, a 1 *kHz* de frecuencia de repetición. Con ello alcanzamos una intensidad en el volumen de alineamiento, de 100-150 *TW/cm*<sup>2</sup>. Se han utilizados dos objetivos diferentes de alineamiento sobre el mapa de alineaciones, la intensidad de la señal de birrefringencia situada a 4.2 ps del tiempo cero (primer  $\frac{T_{rec}}{2}$  de  $N_2$ ), y de la señal de efecto Kerr en  $t = 0$ . Se ha realizado la optimización con fases conformadas por 25 y 50 nodos, utilizando en ambos casos *MODS/p/s/2-2-3*, (226 y 451 evaluaciones respectivamente) partiendo de una fase constante= $\pi$ .

Debido a los problemas de modulación de amplitud que hemos encontrado en el sistema experimental, se ha utilizado un pulso ligeramente expandido hasta alcanzar 250 fs *FWHM*. Si se utiliza un pulso comprimido cualquier modificación de nodo de la fase generaba una pérdida de energía y la optimización no resulta posible. Esta expansión temporal se ha realizado introduciendo trino negativo mediante el compresor del amplificador.

#### Optimización utilizando 50 nodos

El mapa de alineamiento correspondiente a la aplicación de una fase constante=0 sobre la mascara del *SLM* se muestra en la Figura 5.34, junto con su traza de intensidad integrada. Se aprecia la señal en  $t = 0$  debida principalmente al efecto Kerr dominante y las posteriores momentos de alineamiento. Se han señalado los tiempos de optimización utilizados para efecto Kerr (a), situado a 700 fs antes de  $t = 0$ , y de  $N_2$  (b), situado 4.2 ps después de  $t = 0$ . El eje temporal de las figuras corresponde al tiempo de mapeado de la señal.

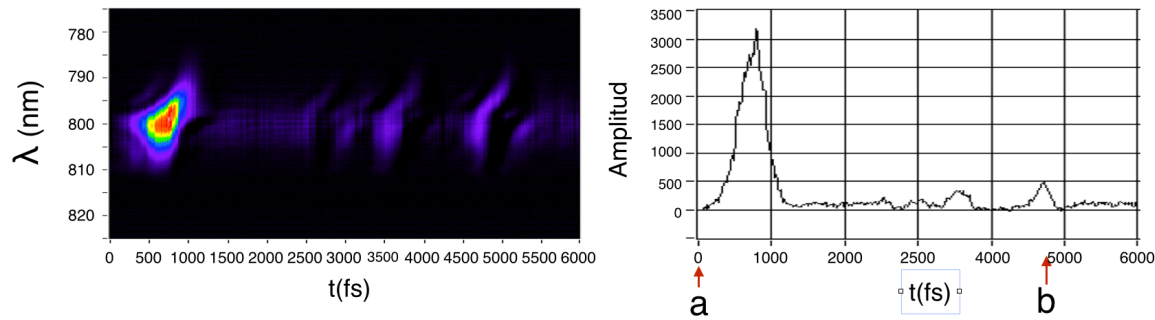


Figura 5.34: Mapa de alineamiento de referencia y su señal integrada correspondiente a un pulso de 250 fs con trino positivo, utilizado como referencia para la optimización mediante 50 nodos. Se ha marcado los tiempos objetivo de optimización correspondientes al efecto Kerr (a) y al primer  $\frac{T_{rec}}{2}$  del  $N_2$ (b)

Para la optimización del efecto Keer se sitúa la línea de retardo de forma que la señal detectada corresponde al punto señalado cómo **a** en la Figura 5.37. El resultado

de la optimización se muestra en la Figura 5.35, en la que se muestra el mapa de alineación (a), su traza integrada (b), la fase obtenida (c) y los valores de evaluación obtenidos a lo largo de la optimización (d). Para maximizar la señal detectada en dicho punto el algoritmo obtiene una fase lineal que genera un desplazamiento temporal del pulso. Este desplazamiento se aprecia claramente en como podemos observar en el mapa de alineación y en señal integrada. En esta última no se aprecia un incremento de señal en el efecto Kerr. La señal de alineamiento de  $N_2$ , situada a 4.2ps tampoco sufre una variación significativa. La optimización sólo se produce durante el primer barrido de la optimización, tal y cómo se observa en la curva de convergencia, en la que se muestran todas las evaluaciones realizadas durante el proceso.

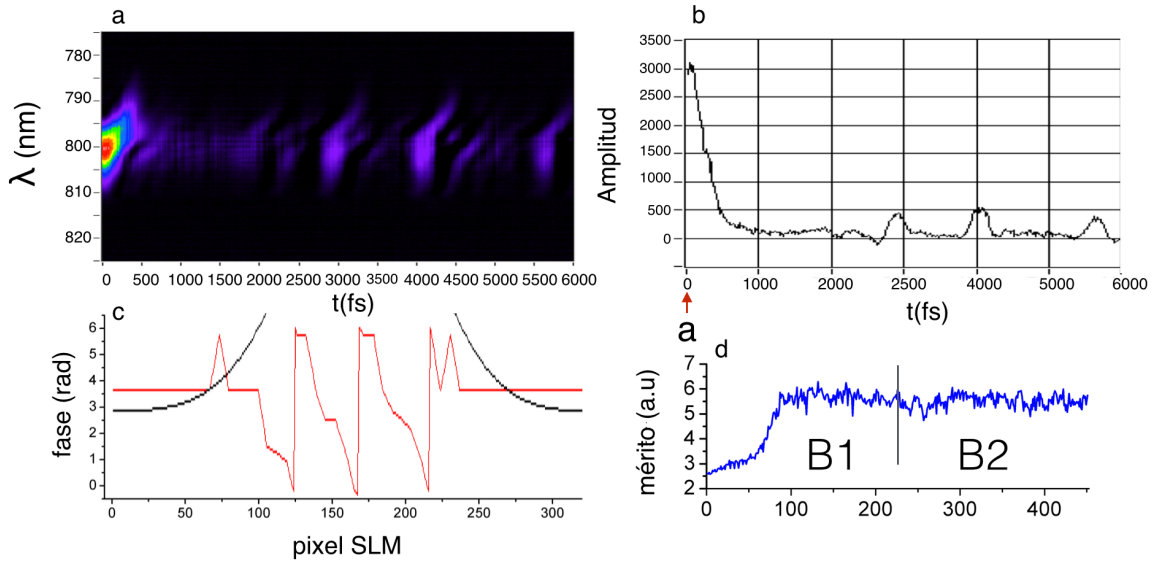


Figura 5.35: Optimización de efecto Kerr inicial a -700 fs de  $t = 0$  utilizando 50 nodos. Mapa de alineación (a), señal integrada (b), fase obtenida (c) y curva de optimización (d)

Si fijamos el tiempo de observación para la optimización en el tiempo de el primer  $\frac{T_{rec}}{2}$ , obtenemos el resultado mostrado en la Figura 5.36. En esta ocasión si se logra producir una mejora significativa de la señal de alineamiento de aproximadamente el 100 %, pasando de 500 a 1000 cuentas sobre la señal integrada. Asimismo la señal debida al efecto Kerr sufre un ligero incremento, de 3000 a 3500 cuentas. En la fase obtenida se puede adivinar el indicio de una fase cuadrática, pero se aprecia que el ajuste de fase se ha conseguido solo en unos pocos nodos. La curva de convergencia es significativamente mas ruidosa que en el caso anterior.

#### Optimización utilizando 25 nodos

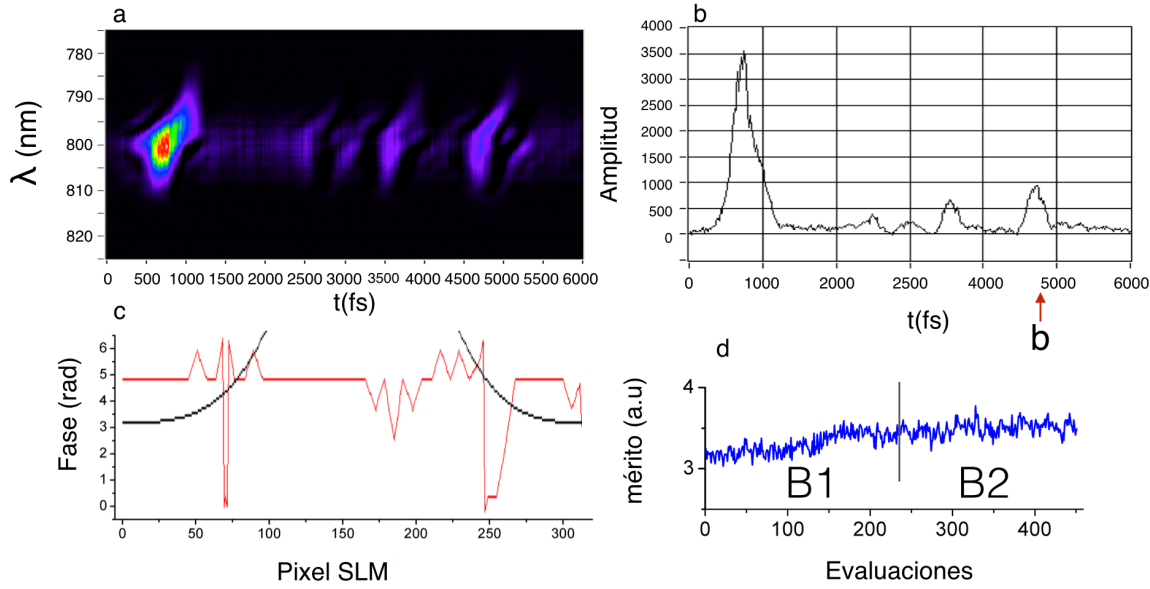


Figura 5.36: Optimización sobre  $\frac{T_{rec}}{2}$  del  $N_2$  mediante la utilización de 50 nodos. Mapa de alineación (a), señal integrada (b), fase obtenida (c) y curva de optimización (d)

Frente los mismos objetivos de optimización se ha disminuido el número de nodos de control sobre la fase. De esta forma conseguimos que la cantidad de energía espectral manejada por cada nodo sea mayor, a costa de sacrificar parte del control temporal.

Hemos tomado una nueva medida de el alineamiento con una fase cero aplicada sobre el *SLM* que se muestra en la Figura 5.37. El resultado es ligeramente diferente al anterior mapa de referencia. Vemos cómo el efecto Kerr en esta ocasión nos ofrece 2750 cuentas sobre la señal integrada y el alineamiento aproximadamente 300. Nuevamente realizamos la optimización en los tiempos señalados como **a** (Kerr) y **b** (alineamiento) en la figura.

Cuando realizamos la optimización de efecto Kerr nuevamente obtenemos un desplazamiento temporal de la señal. En esta ocasión la fase lineal obtenida se encuentra mejor definida, y también se aprecia un ligero incremento de la señal Kerr, pasando de 2750 a 3000 cuentas. Asimismo la señal de alineamiento se incrementa en un 100 %, de 300 a 600 cuentas. La cantidad de alineamiento está directamente relacionada con la generación inicial de efecto Kerr [96]. La optimización se produce, también en esta ocasión, solamente durante el primer barrido.

Al fijar el tiempo de optimización sobre el alineamiento de  $N_2$ , Figura 5.39, se logra un incremento de señal de 300 a 2500 cuentas, con un incremento de la señal Kerr de 2750 a 7300 cuentas. La fase obtenida se encuentra mejor definida que utilizando 50



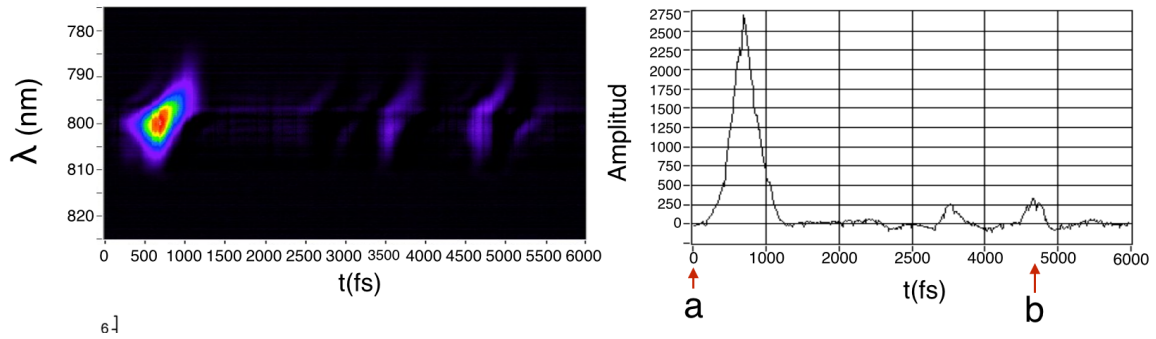


Figura 5.37: Mapa de alineamiento correspondiente a un pulso de 250 fs con trino positivo, referencia para la optimización mediante 25 nodos. Se ha marcado los tiempos objetivo de optimización correspondientes al efecto Kerr (a) y primer  $\frac{T_{rec}}{2}$  del  $N_2$ (b)

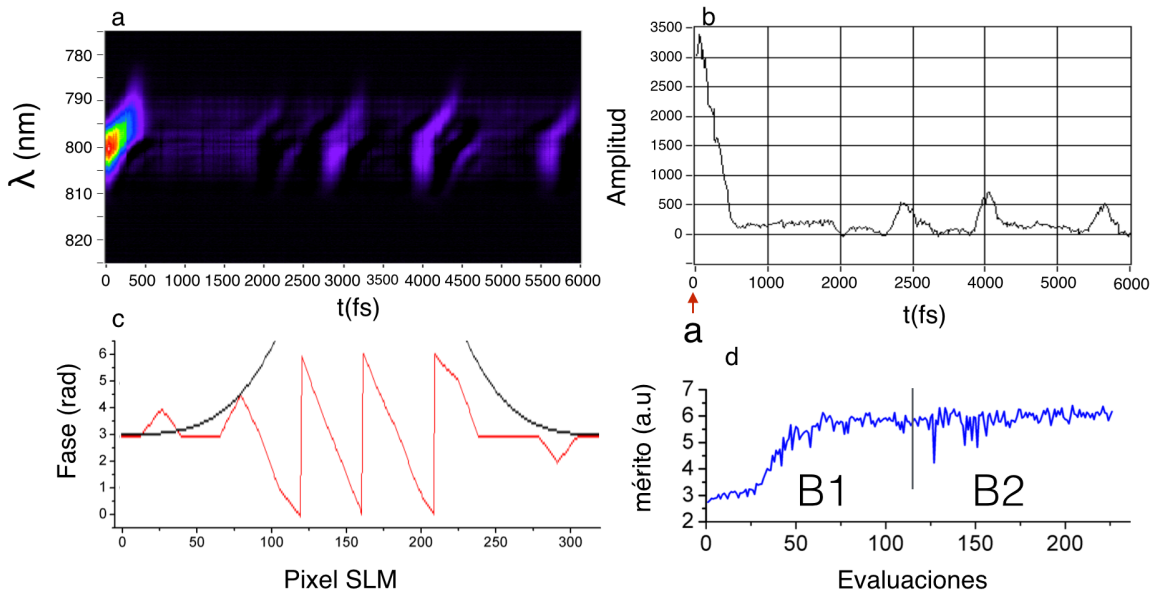


Figura 5.38: Optimización de efecto Kerr inicial a -700 fs de  $t = 0$  utilizando 50 nodos. Mapa de alineación (a), señal integrada (b), fase obtenida (c) y curva de optimización (d)

nodos. Puede verse cómo su conformación es cuadrática. El manejo de mayor energía por nodo hace posible este resultado, que corresponde a una compresión del pulso inicial.

En la Figura 5.40 se muestran las trazas de *FROG* del pulso original y el obtenido tras la optimización mediante 25 nodos, así como una comparación temporal de los mismos. La forma temporal proviene de la deconvolución de las trazas de *FROG*,

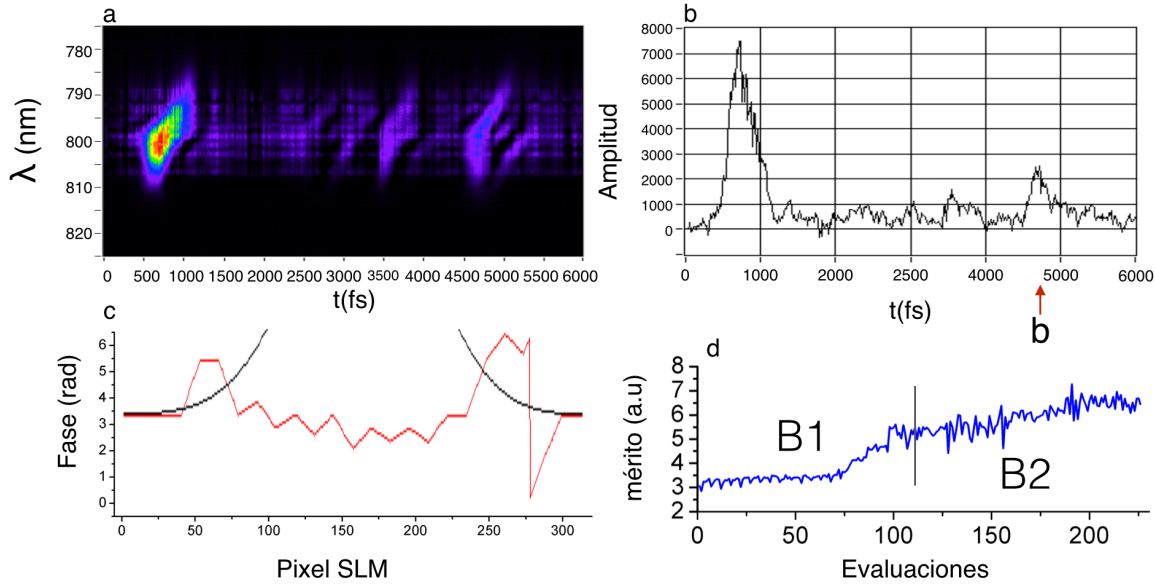


Figura 5.39: Optimización sobre  $\frac{T_{rec}}{2}$  del  $N_2$  mediante la utilización de 50 nodos. Mapa de alineación (a), señal integrada (b), fase obtenida (c) y curva de optimización (d)

el pulso original se extiende  $\approx 250$  fs  $FWHM$ . Tras la optimización se comprime hasta alcanzar  $\approx 150$  fs  $FWHM$ .

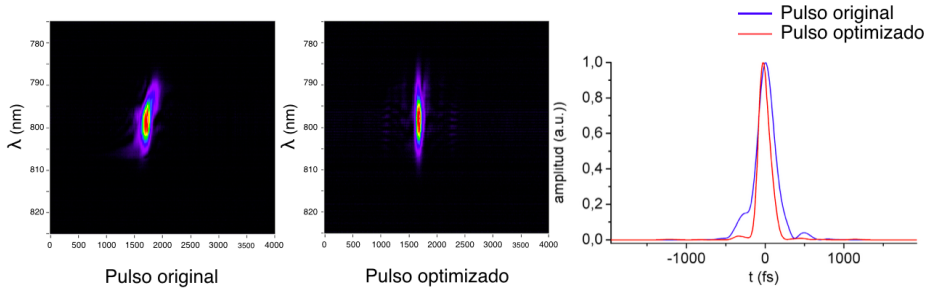


Figura 5.40: Trazas de *FROG* de los pulsos original y optimizado correspondientes a la optimización de  $N_2$  en  $\frac{T_{rec}}{2}$  sobre 25 nodos y pulsos temporales resultantes.

Al utilizar una ventana de observación en la que el efecto predominante es el efecto Kerr, *MODS* genera un desplazamiento temporal del pulso, retrasando la excitación  $\approx 700$  fs. Cuando la observación se sitúa a 4.2ps, genera una fase de compensación del pulso original para incrementar el alineamiento. Este incremento de alineamiento esta directamente relacionado con la generación de efecto Kerr inicial, que también aumenta. Surge una discrepancia al observar cómo el valor de señal debida efecto

Kerr es menor cuando el observable es el propio efecto Kerr que cuando se optimiza el alineamiento. Se obtienen  $\approx 3000$  y  $\approx 7000$  cuentas respectivamente. La explicación, que se vera en más detalle en el apartado 5.5.2.d, proviene del comportamiento de *MODS*. Cuando se intenta la optimización directa del efecto Kerr inicial existen dos elementos que influyen directamente en la generación. El primero de ellos es la posición temporal del pulso, el segundo, su compresión temporal. Es necesario primero desplazar el pulso antes de comprimirlo, de hecho la compresión resultaría contraproducente en un primer estadio, ya que la generación de señal se alejaría de la ventana de observación. Este primer ajuste, desplazamiento temporal, se logra correctamente durante el primer barrido. A lo largo del segundo barrido, en ninguno de los dos casos (25 o 50 nodos) se logra realizar una mejora significativa de la señal. Es posible que este comportamiento sea debido a la distancia de salto inicial,  $\sigma$ . Esta distancia disminuye exponencialmente con el numero de barridos ( $B$ ), siendo  $\sigma = \frac{2\pi}{3 \cdot 2^{B-1}}$ , con lo que en el segundo barrido ya podemos encontrarnos por debajo de nuestro límite de detección.

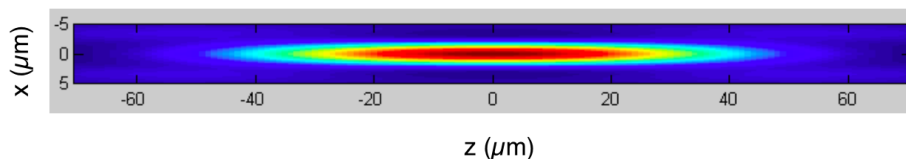


Figura 5.41: Volumen focal del área de interacción, posee una extensión de  $\approx 60 \mu m$  *FWHM* a lo largo del eje de propagación y  $\approx 3 \mu m$  *FWHM* en la cintura de haz

Un segundo efecto que puede estar implicado es el acoplamiento espacio temporal, que tiene como consecuencia un desplazamiento espacial del foco [45]. En la Figura 5.41 se muestra el volumen focal que poseen los pulsos en el área de interacción, longitudinalmente se extienden  $\approx 60 \mu m$  *FWHM* y la cintura de haz tiene tan solo  $\approx 3 \mu m$  *FWHM*. Los pulsos viajan por caminos diferentes, los procedentes del sintetizador de pulsos disponen de unos 5 metros de propagación antes de llegar al área de interacción. La imposición de la fase lineal puede provocar el desplazamiento lateral del foco por acoplamiento espacio temporal, haciendo que el volumen de interacción disminuya. De hecho, si observamos las fases obtenidas para la optimización del efecto Kerr, sobre todo en el caso de 50 nodos, podemos ver como no son exactamente lineales. Esto implicaría que no solo se está desplazando el pulso, sino que es posible que se esté efectuando una ligera compresión de pulso. Por desgracia no disponemos de las trazas de *FROG* correspondientes a la optimización de efecto Kerr.

### 5.4.3. Conclusiones

Se han mostrado ejemplos que avalan la viabilidad de la aplicación de *MODS* sobre procesos dependiente de la intensidad instantánea del pulso inducidos sobre un material en fase gas.

El mecanismo de búsqueda que utiliza *MODS* lo convierte en un optimizador local. Esto implica que optimizará aquello que disponga en su ventana de observación y que le proporcione una cuenca de atracción. La excitación de las moléculas de nitrógeno en aire nos proporciona dos observables de naturaleza muy diferentes, aunque ambos son detectables gracias a la birrefringencia que inducen; El efecto Kerr, un fenómeno no-lineal de tercer orden, y la alineación recurrente de un paquete de ondas rotacional. *MODS* es capaz de encontrar de forma efectiva una solución diferente para cada uno de estos problemas.

## 5.5. *FROG* con desajuste temporal

Con el fin de probar nuestro algoritmo en problemas donde la solución implique una estructuración temporal diferente a obtener la máxima compresión temporal, hemos diseñado el experimento que denominamos *FROG* con desajuste temporal.

En esta ocasión nuestro pulso debe *escapar* de un laberinto geométrico, a través de una puerta no-lineal. La llave es la fase. El esquema básico del experimento podemos verlo en la Figura 5.42. Nuestro pulso se inyecta en el sistema de medición de *FROG*, en el que se han desbalanceado los brazos de forma que el pulso de excitación atraviesa el medio no-lineal *1ps antes* que el de muestreo. En estas condiciones el pulso de muestreo es rechazado en el analizador al no existir solapamiento con el pulso de excitación. El problema consiste en encontrar la conformación temporal que permita al pulso de muestreo atravesar el analizador. La solución al problema exige bombear energía del pulso a la posición temporal adecuada, para que el muestreo y la puerta Kerr coexistan temporalmente.

### 5.5.1. Descripción experimental

Para la realización de este experimento se ha utilizado el sistema experimental de *FROG*. Su representación esquemática se muestra en la Figura 5.42. El principio básico de funcionamiento de *FROG*<sup>84</sup> es la medición de la birrefringencia inducida por efecto Kerr que se produce en un medio no-lineal. El pulso de entrada se divide en dos: un pulso de excitación y otro de muestreo. El pulso de muestreo viaja a través de un conjunto polarizador-analizador cruzados. Gracias a la rotación de polarización producida por la birrefringencia inducida en el medio no-lineal (lámina de SF57) por el pulso de excitación, una porción de su energía es capaz de atravesar el analizador, y es medida mediante el espectrómetro. Cuando existe solapamiento espacial y temporal la maximización de la señal de birrefringencia se consigue con la máxima compresión de pulso.

Mediante la línea de retardo situada en el haz de excitación podemos alejar o acercar temporalmente ambos pulsos. En este experimento alejamos temporalmente los pulsos 1ps, equivalente a  $\approx 10$  veces la anchura del pulso original. De esta forma a la generación de efecto Kerr le hemos añadido un problema geométrico, en forma de diferencia de camino óptico. El reto de optimización es encontrar el pulso adecuado para que se maximice la señal en el espectrómetro, es decir, para que los dos pulsos puedan coexistir temporalmente sobre el medio no-lineal.

Bajo estas condiciones solo existe solapamiento temporal de los pulsos en sus colas, la energía esperada para un pulso gaussiano en una ventana localizada a  $10 FWHM$  de su centro será de aproximadamente  $1E^{-5}$  de su valor máximo. Intuitivamente para

<sup>84</sup>Una visión mas amplia de *FROG* se da en el Capítulo 3

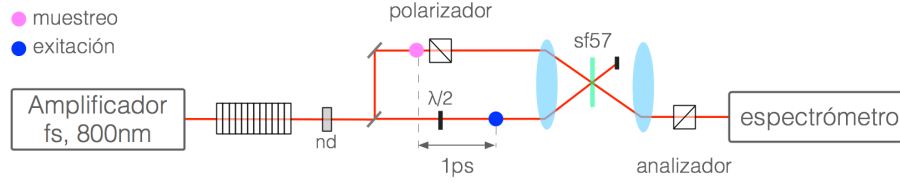


Figura 5.42: Representación esquemática de los pulsos de excitación y muestreo en un sistema de FROG con los brazos desbalanceados. El pulso de muestreo y excitación se hayan separados 1 ps, de forma que su interacción sobre el medio no-lineal (*sf57*) es mínima

poder generar el efecto puerta Kerr en el momento en el que el pulso de muestreo atraviesa la lámina de *sf57* el pulso ha de dividirse en dos subpulsos con una separación temporal igual a la diferencia de camino óptico entre ambos brazos (1ps). De esta forma cuando el primer subpulso del muestreo llega a la lámina el segundo del haz de excitación general la puerta.

Hemos realizado tres tipos de experimentos. En el primero compararemos el desarrollo de *MODS* frente a el algoritmo genético (*AG*), utilizando el *Sintetizador 1* y estando presente el *SSA*<sup>85</sup> a la salida del amplificador. En el segundo compararemos *MODS* frente a el *AG* utilizando el *Sintetizador 2*, sin la presencia del *SSA* y, finalmente, en el tercero comparamos desarrollo de *MODS* Differential Evolution (*DE*).

Para la realización de las medidas de las trazas de FROG utilizamos un filtro neutro con densidad óptica (OD) OD1, bajo estas condiciones no es posible detectar la señal producida en el tiempo de optimización dada la poca energía existente en el pulso de excitación a 1 ps, por lo en el proceso de optimización dicho filtro neutro es sustituido por un OD0.3, lo que nos proporciona una señal 1000 veces mayor.

## 5.5.2. Resultados experimentales

### 5.5.2.a. Comportamiento de *MODS* frente a *AG* sobre el sintetizador 1

En este experimento la detección de la señal de birrefringencia se ha realizado mediante un fotodiodo lineal (DET110, *Hamamatsu*) en vez de utilizar el espectrómetro del sistema *FROG*. El haz procedente del analizador se enfocado sobre el fotodiodo mediante una lente de 10cm de focal. La señal se registra mediante un osciloscopio (*Yokogawa DL9000*) con un promediado de 8 pulsos. Se ha utilizado el sintetizador 1 cuyas características se muestran en la tabla 3.3.1, página 34. Durante estos experimentos se encontraba presente el *SSA* a la salida del amplificador regenerativo.

<sup>85</sup>Single Shot Autocorrelator, introducía importantes variaciones de duración de pulso

Tal y como se describió en el apartado 5.1.3 este elemento generaba una considerable variación temporal del pulso.

Se ha utilizado barrido secuencial utilizando dos tipos de inicializaciones de fase y diferente número de saltos. Se muestran los resultados de *MODS/50/p/s/1-3* y *MODS/50/a/s/1-4* (en adelante (*MODSp* y *MODSa*) con fase inicial aleatoria uniforme  $[0, 2\pi)$ . Invierten 251 y 301 evaluaciones respectivamente. Para el *AG* se utiliza una población de 30 individuos<sup>86</sup> con élite de 2, codificación de 6 bits, una probabilidad de mutación de 0.05, probabilidad de cruce 0.8 y con una inicialización uniforme de la población en el rango  $[0, 2\pi)$ . Se permite la ejecución durante 84 generaciones, lo que nos da un total de 2520 evaluaciones.

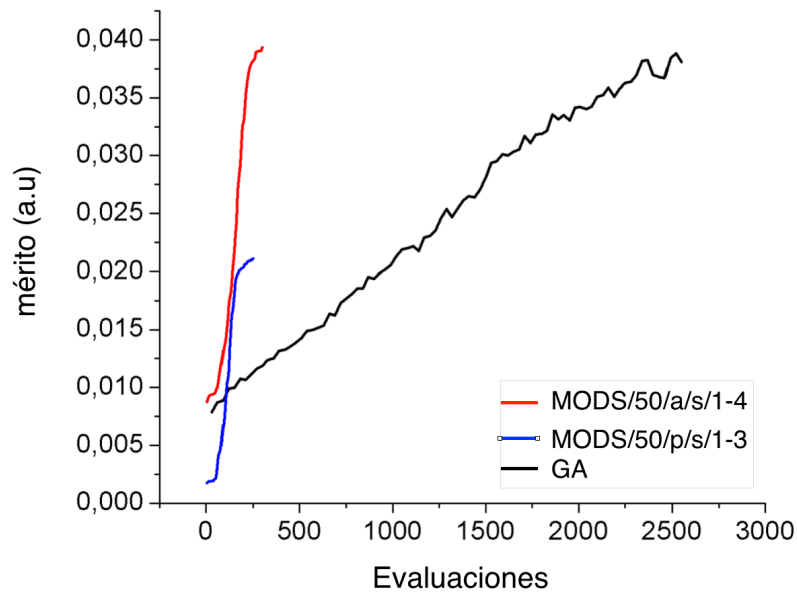


Figura 5.43: Curvas promedio de los algoritmos probados. En promedio, *MODSa* alcanza el mismo nivel de optimización que el *AG* pero utilizando un número de evaluaciones 8 veces menor.

Para realizar la comparación entre *MODS* y *AG* se realizan 20 lanzamientos de cada algoritmo, utilizando evaluación de mérito, en la Figura 5.43 podemos ver las curvas de convergencia obtenidas.

Existe una notable diferencia de rendimiento entre *MODSp* y *MODSa* que es achacable al fenómeno de modulación de amplitud residual que se produce al trabajar con una fase plana. Este efecto se ve amortiguado, cómo hemos visto en anteriores experimentos, al trabajar con fases aleatorias. Las diferencias que se aprecian en el punto de partida de ambas convergencias son directamente producidas por la fase

<sup>86</sup>Se ha intentado la optimización con tan solo 10 individuos, pero la optimización era inviable

inicial. Las fases aleatorias nos proporcionan pulsos temporalmente dispersos, por lo que la interacción entre las energías del pulso de excitación y el de muestreo es mayor que cuando trabajamos con fase plana, cuya energía está concentrada a 1ps del pulso de muestreo. La evolución de la curva de convergencia del *AG* es prácticamente lineal, quizá se comienza a apreciar cierta saturación en el ultimo estadio de la optimización. En promedio la solución alcanzada por *MODSa* alcanza el mismo valor que *AG* 8.4 veces mas rápido.

Para observar con mas detalle la evolución de cada uno de los algoritmos mostramos cada uno de los lanzamientos en la Figura 5.44, donde se ven las curvas de convergencia obtenidas en los 20 lanzamientos. Estas curvas están compuestas por, en el caso de *MODS*, el resultado de la optimización de cada uno de los nodos (50 puntos en total) en el caso del *AG* por el mejor individuo de cada una de las 84 generaciones.

Comencemos analizando el comportamiento del *AG*. Aunque la utilización de elitismo nos asegura la conservación de las mejores soluciones entre generaciones, observamos una gran oscilación en los resultados intergeneracionales. Las fluctuaciones de potencia y temporales del láser, son las responsables (hablaremos de ello al referirnos a la Figura 5.45). Si bien 2840 evaluaciones pueden no ser suficientes para lograr una optimización sobre 50 parámetros en un *AG*, se puede observar en alguna de las curvas individuales indicios de saturación de convergencia. En cualquier caso existe una gran dispersión en las soluciones finales.

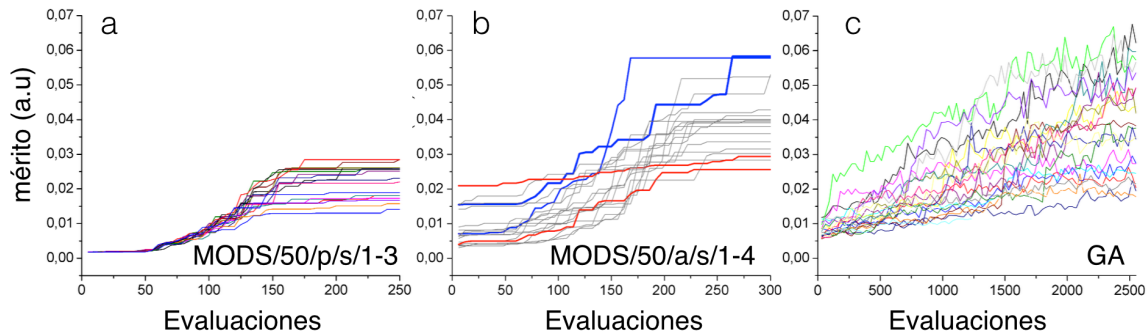


Figura 5.44: Todas las curvas de convergencia de todos los algoritmos

*MODS* muestra su comportamiento típico ante la optimización secuencial, no optimizando en las primeras y últimas evaluaciones, correspondientes a las colas espectrales y evolucionando sigmoidalmente en los nodos centrales. En *MODSp* partimos siempre de la misma fase y podemos ver cómo los errores cometidos en la evaluación de los nodos se propagan a lo largo de la optimización, siendo responsables, junto con las fluctuaciones del láser, de la dispersión de soluciones observada. *MODSa* presenta un comportamiento mas diferenciado en cada uno de los lanzamientos, pero podemos observar cómo un buen punto de partida no es garantía una buena solución final. De



hecho, alguna de las mejores soluciones ofrecidas tiene alguno de los peores puntos de partida (lineas azules). Los peores resultados pueden tener orígenes de buena o mala calidad (lineas rojas). La dispersión de soluciones que presentan *MODSp* y *MODSa* es inferior, en cualquier caso, a la que ofrece el *AG*. Si bien este último presenta alguna solución claramente superior, el número de evaluaciones requeridas para alcanzarla no parece justificado a efectos prácticos.

Para ver cómo puede afectar el ruido al proceso de convergencia mostramos en la Figura 5.45 el resultado de todas las evaluaciones de mérito<sup>87</sup> realizadas en un lanzamiento de *MODSp* (251 evaluaciones) y en un *AG* que hemos dejado evolucionar durante 5050 evaluaciones (unas 170 generaciones). Cada una de las muestras requiere aproximadamente 1s. En el caso del *AG* estamos observando 84 minutos de optimización. La linea magenta nos muestra la comparación entre los tiempos de ambas optimizaciones. Las oscilaciones de energía a medio plazo del láser que vimos en la Figura 5.2, página 88, son claramente apreciables en la evolución del *AG*, llevando a la evaluación de las fases probadas a niveles de cercanos, e incluso inferiores, a los de partida, cómo sucede alrededor de la evaluación 1500.

Estas fluctuaciones suponen una barrera para el proceso de optimización, falseando el valor de cada una de las fases que se están probando y dificultando enormemente la selección de candidatos. Estas variaciones también afectan a la convergencia de *MODS*, pero al requerir un número mucho menor de evaluaciones su resultado se verá menos afectado por ellas.

Una de las implicaciones de la utilización de un algoritmo determinista es que siempre obtenemos la misma solución ante las mismas condiciones iniciales, sufriendo cierta desviación debida al ruido experimental, tal y cómo hemos visto en la evolución de las convergencias de *MODSp*. En la Figura 5.46 se muestran las fases obtenidas en cada uno de los lanzamientos de los algoritmos. Ordenados de izquierda a derecha tenemos el resultado de menos a mas estocástico. *MODSp* parte siempre de la misma fase, sus soluciones son virtualmente idénticas. Se introduce una fase lineal en la primera mitad del espectro. *MODSa* también nos ofrece soluciones similares entre si, con una mayor variabilidad debida a sus diferentes fases iniciales. Finalmente, el *AG* presenta una gran variabilidad en las fases finales, debido a su comportamiento estocástico. Creemos que una ventaja del carácter determinista de *MODS* es que puede ayudar en la interpretación de resultados y de procesos subyacentes a los efectos observados en experimentos de optimización.

Para observar temporalmente las soluciones se muestran las trazas de *FROG* de las mejores y peores soluciones obtenidas por *MODSa* y *AG*. Pueden observarse en la Figura 5.47. La aparente modulación de amplitud que se observa en forma de franjas horizontales es consecuencia del propio funcionamiento del sistema de medida [2]. En

---

<sup>87</sup>Los valores a cero, lineas verticales, son debidos a errores de comunicación entre los dispositivos de medida y no han sido considerados por los algoritmos

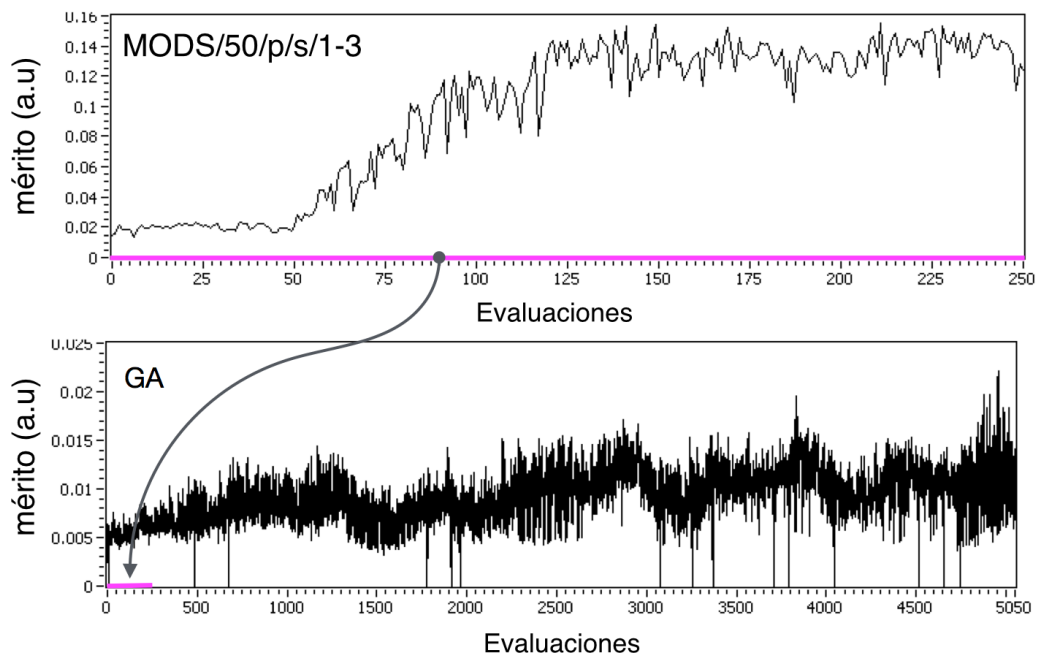


Figura 5.45: Todas las evaluaciones de un lanzamiento de *MODSp* frente a un lanzamiento del *AG* al que se le ha permitido realizar 5000 evaluaciones (1 evaluación por segundo). Se aprecia cómo la evolución de *AG* sigue a las fluctuaciones de energía a medio plazo del láser.

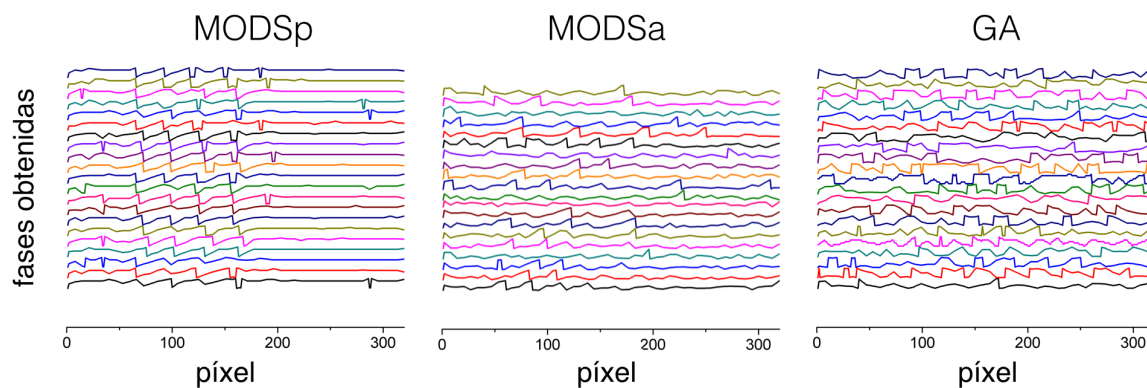


Figura 5.46: Comparativa visual de todas las fases obtenidas en cada lanzamiento por los algoritmos. *MODSp* obtiene el mismo tipo de fases en cada lanzamiento. La fase aleatoria inicial de *MODSa* hace que exista una mayor variedad en las soluciones. *AG* presenta un resultado diferente en cada lanzamiento

todos los casos la energía del pulso se ha distribuido en paquetes de energía separados 1ps, la distancia entre los dos caminos ópticos. De esta forma uno de los paquetes genera la puerta Kerr que otro puede ver, solucionando de esta forma el problema.

El *AG* nos ofrece paquetes de energía no solo a 1ps, sino también múltiples. En la imagen de la mejor solución de *AG* podemos ver la energía concentrada a 2ps, pero en su peor solución vemos cómo la energía está dispersa a lo largo de todo el tiempo, con cierta tendencia a estar concentrada en intervalos de 500 fs. Este tipo de conformaciones temporales son soluciones locales que permiten la auto-interacción del pulso pero que distan de ser la solución óptima. Por su parte las soluciones de *MODSa* tienen todas un desarrollo adecuado, siendo incluso la peor solución encontrada, una solución aceptable.

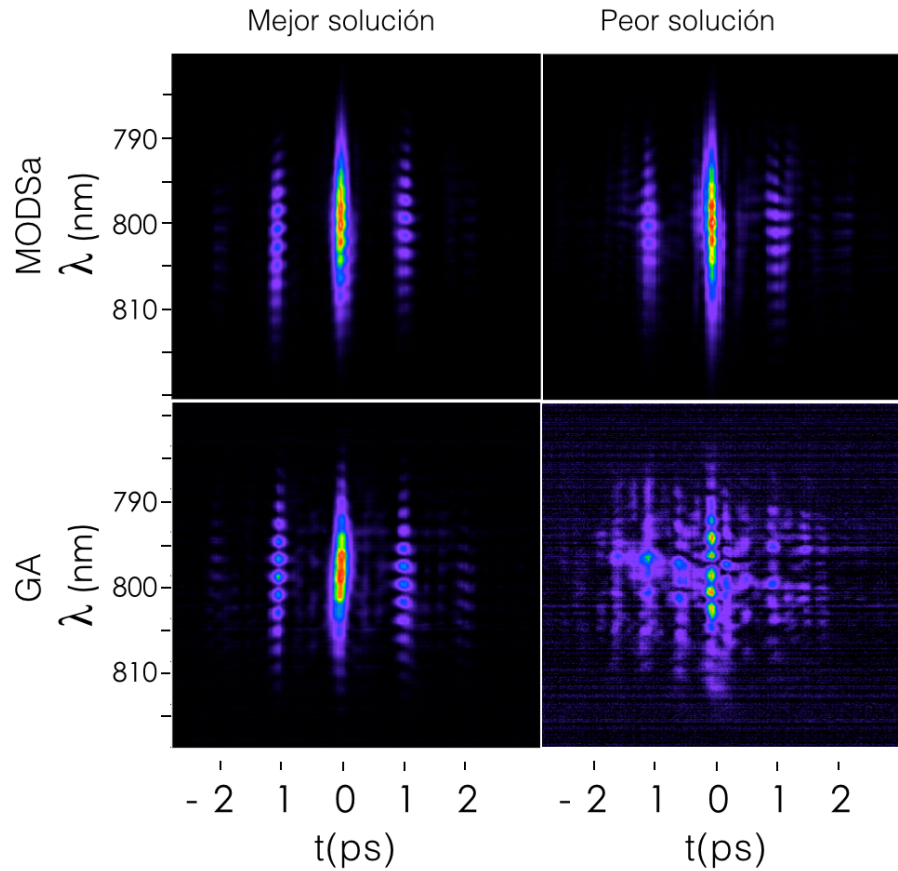


Figura 5.47: Trazas de *FROG* de la mejor y peor solución obtenida por *AG* y *MODS*. Las soluciones obtenidas por *MODSa* son de calidad comparable en todos los casos, mientras que el *AG* presenta una considerable dispersión de energía.

En el siguiente apartado haremos un análisis más profundo de la solución a la que

han llegado los algoritmos y veremos cómo, en realidad, dividir el pulso en dos sub-pulsos con la separación de 1ps no es, en realidad, la mejor solución para el problema.

### 5.5.2.b. Comportamiento de *MODS* frente a *AG* sobre el sintetizador 2

En estos experimentos se utiliza el sintetizador 2 (tabla 3.3.1) que nos ofrece una controlabilidad mejor que el usado en el anterior ejemplo. cómo mejora en el sistema de adquisición de la señal de birrefringencia hemos aprovechado que se ha sustituido el espectrómetro utilizado en FROG por un *Mightex* con una resolución espectral de 0.2 nm. Utilizamos su lectura cómo señal de feedback, en sustitución del fotodiodo lineal. Utilizamos el máximo del espectro registrado con un tiempo de adquisición de 100ms cómo medición de la birrefringencia. Esto nos permite mejorar el tiempo de adquisición de señal bajándolo hasta, aproximadamente, 500ms<sup>88</sup> por muestra.

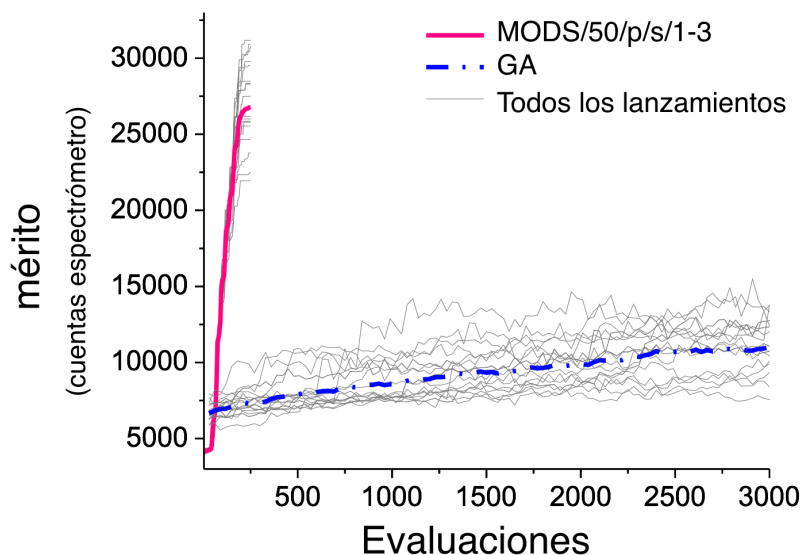


Figura 5.48: Curvas promedio de convergencia, junto con todas las curvas de convergencia obtenidas por *MODS* y *AG*.

Una diferencia fundamental existente frente a los lanzamientos que se han analizado en el anterior apartado, y con los que veremos en este es que estas pruebas se han realizado después de un ajuste completo del sistema. El sistema láser (oscilador y amplificador) se encuentran en un nivel óptimo de potencia y se ha realizado una alineación exhaustiva del pulso shaper. También se ha eliminado el *SSA* que estaba situado en la salida del amplificador y presente durante la obtención de los anteriores

<sup>88</sup>250 ms de estabilización del SLM + 100 ms de integración espectral + 150 ms de adquisición y procesamiento de datos

resultados. Cómo se ha descrito en el apartado 5.1.3 introducía oscilaciones de señal asociadas a la oscilación de la duración de pulso.

Todo ello nos ha permitido obtener unos mejores resultados.

El experimento se ha realizado utilizando 50 nodos de control y comparando el desarrollo de *MODS/50/p/s/1-3* (251 evaluaciones) frente al *AG* con la misma sintonización utilizada anteriormente: población de 30 individuos, elitismo de 2,  $pm=0.05$ ,  $pc=0.8$ , 6 bits población uniforme en el rango  $[0, 2\pi]$  y permitiéndole evolucionar durante 100 generaciones (3000 evaluaciones).

Hemos realizado 20 lanzamientos con cada uno de los algoritmos obteniendo el resultado promedio que se muestra en el Figura 5.48, junto con la evolución de todos los lanzamientos. Gracias a las buenas condiciones en las que se encontraba el sistema experimental *MODS* supera ampliamente el resultado conseguido por *AG*, tanto en tiempo de optimización cómo en valor de intensidad alcanzado.

En la Figura 5.49 se muestran las curvas de convergencia de *MODS*, su promedio y la intensidad espectral asociada, en función del pixel sobre el SLM en el que se están efectuando las optimizaciones marginales. Cómo hemos visto, el grado de optimización alcanzado depende de la intensidad espectral asociada.

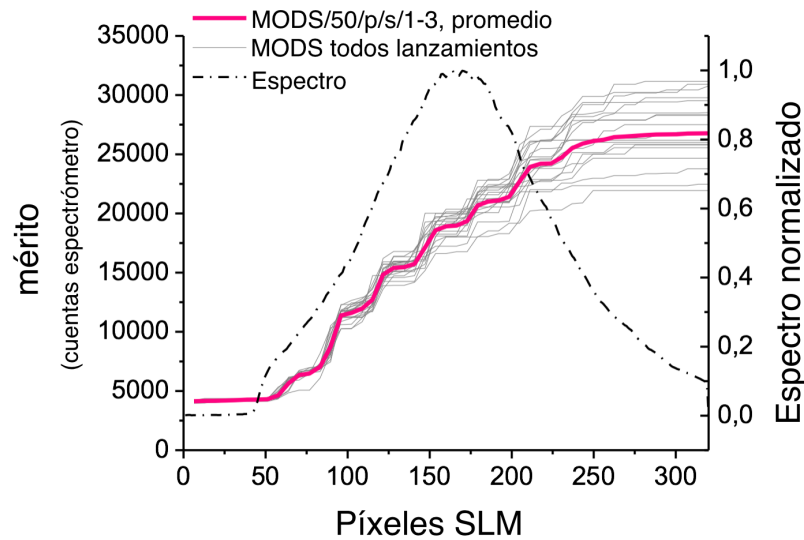


Figura 5.49: Curva promedio de convergencia de *MODS* junto con todas las evaluaciones realizadas. La evolución de la curva está relacionada con la energía espectral asociada a cada nodo.

En las trazas de *FROG* de las mejores y peores soluciones vemos, cómo era de esperar de las curvas de convergencia, que el resultado de *MODS* es claramente superior al obtenido por el *AG*. En este último incluso en la mejor solución, existe energía fuera del tiempo de autosuperposición. En la peor solución de *AG* podemos ver, al igual

que sucedía en los resultados mostrados en la Figura 5.47, energía depositada a intervalos de 500 fs. Esta situación genera la puerta Kerr con solapamiento temporal entre los trenes de pulsos, cada dos pulsos con 1ps de separación serán detectados, pero la eficiencia de la señal se ve seriamente comprometida por la ineficiente distribución de energía obtenida.

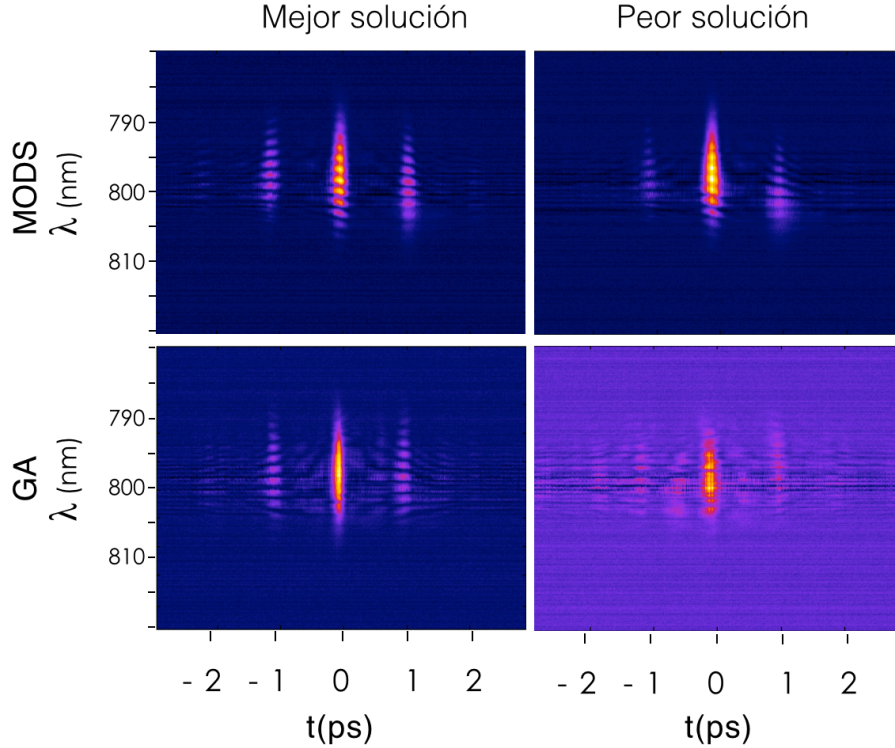


Figura 5.50: Trazas de *FROG* de la mejor y peor solución obtenida por el *AG* y *MODS*

En la toda la discusión previa relativa al la solución a este problema hemos partido de la intuición de que la mejor solución posible consiste en una pareja de pulsos por transformada, separados 1ps. Esto nos proporcionaría la máxima potencia de pico en solapamiento y, por tanto, la máxima señal de birrefringencia. Al analizar la solución intuitiva hemos de tener en cuenta que no es, de hecho, alcanzable mediante un sintetizador que utilice exclusivamente conformación de fase.

Para determinar la solución mas próxima a dos pulsos, lo mas cortos posibles, que podemos obtener mediante nuestro sintetizador, hemos usado el algoritmo de *GS*<sup>89</sup> para obtener la fase necesaria para conformar un doble pulso por transformada (100 fs cada uno), con una separación de 1ps. La fase ofrecida por *GS* puede verse en la

<sup>89</sup>Gerchberg-Saxton, una explicación detallada la pueden encontrar en el capítulo 5.2

Figura 5.51 (línea azul rayada) donde se compara con el mejor resultado de *MODS* (magenta). La Figura 5.52 muestra la conformación temporal ofrecida por *GS* y la que se obtiene al realizar la deconvolución de la traza de *FROG* de la mejor solución alcanzada por *MODS*.

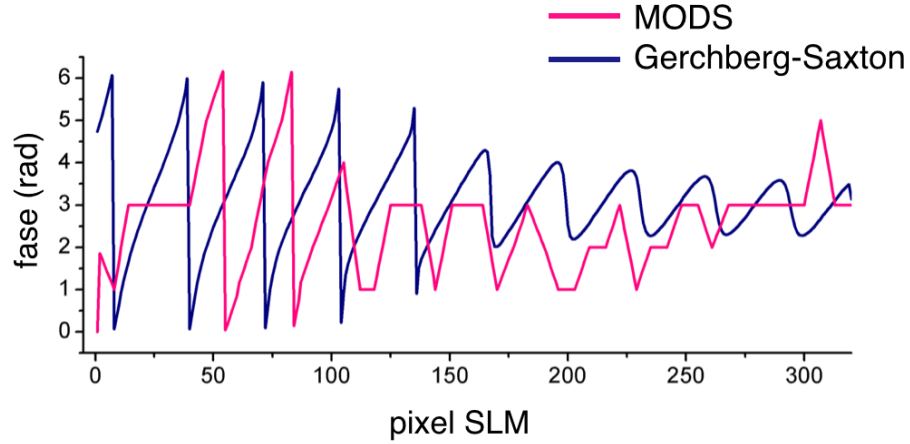


Figura 5.51: Fase teórica para un doble pulso obtenida por GS(azul) y fase obtenida experimentalmente por MODS(rosa)

Podemos ver cómo la solución temporal obtenida por ambos algoritmos no es un doble pulso: es un tren de pulsos. Al utilizar modulación de fase hemos visto cómo, por regla general, no existe una solución exacta al problema de la conformación de fases. En este caso parece que la mejor aproximación, al imponer que cada uno de los subpulsos tenga la menor duración posible, es un tren de pulsos asimétrico, con diversas intensidades relativas. La fase de *GS*, al igual que la de *MODS*, está compuesta por dos formas básicas: En la primera parte del espectro existe una componente lineal sobre la fase. Superpuesta y distribuida a lo largo de toda la fase también existe una componente sinusoidal amortiguada. La fase lineal genera la división del pulso en dos pulsos que no son por transformada [13] y la componente sinusoidal es una fase se utiliza comúnmente para la generación de trenes de pulsos [18]

La fase obtenida por *MODS* es ciertamente irregular, teniendo mayores desviaciones frente a la ofrecida por *GS* en las zonas en las que espectralmente no hay energía. Sin embargo, se reproduce con bastante fidelidad el resultado temporal de *GS*. Ambas soluciones (*MODS* y *GS*) muestran un tren de pulsos con una relación de intensidades, entre sus dos pulsos principales separados por 1ps de aproximadamente 1/0.6. Los subpulsos secundarios, con una separación de 1ps, también existen en la solución de *MODS*.



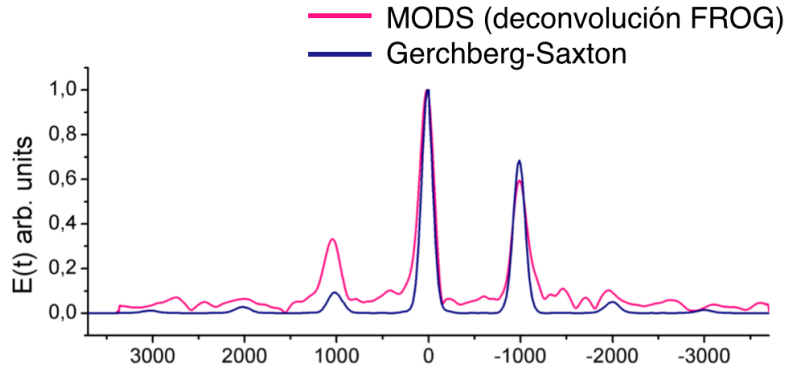


Figura 5.52: Aproximación temporal a un doble pulso con 1ps de separación obtenida por *GS* y solución experimental de *MODS*

### 5.5.2.c. Comportamiento de *MODS* frente a *DE* sobre el sintetizador 2

Se ha evaluado la respuesta de Differential Evolution (*DE*) sobre este problema y la hemos comparado con la conseguida por *MODS*. Por desgracia, en el momento de realizar los resultados experimentales de esta sección el sistema láser presentaba una caída de potencia hasta los 850 mW, frente al 1000 mW que debería ofrecer. En estas condiciones nuestra experiencia es que la optimización mediante *MODS* se ve comprometida, como veremos en los resultados

Utilizamos *DE* con una población de 10 individuos,  $F=0.7$ ,  $C=0.7$ , probabilidad de aplicación de mutación trigonométrica,  $pm=0.05$ , se le deja evolucionar durante 2000 evaluaciones. *MODS* se configura como *MODS/50/p/s/1-3* (251 evaluaciones) partiendo de una fase plana  $=\pi$ . Se utiliza optimización de mérito.

En la Figura 5.53 se muestran las evaluaciones realizadas durante la optimización por ambos algoritmos durante 10 lanzamientos cada uno de ellos<sup>90</sup>. Las diez primeras curvas de convergencia corresponden a *DE* seguidos de las 10 correspondientes a *MODS*. *DE* estabiliza su convergencia en casi todos los lanzamientos, aunque los valores finales alcanzados son similares, su comportamiento a lo largo de las diferentes optimizaciones es bastante irregular. En algunos de ellos la población permanece muy dispersa, espacialmente en el segundo y décimo lanzamientos. Tanto en el segundo como en el séptimo lanzamiento podemos ver cómo la población se dispersa al final de la optimización. Esto es un claro indicador de la presencia de ruido en el sistema que hace que la evaluación de la población no sea efectiva. *MODS* presenta un comportamiento consistente en todos los lanzamientos, pero su valor alcanzado es ligeramente peor al conseguido por *DE*. La presencia del ruido podemos verla reflejada en el inicio

<sup>90</sup>Una pérdida de datos nos impide disponer de las curvas de optimización en un formato mas adecuado



de sus curvas de convergencia, pese a estar inicializado siempre desde la misma fase presenta muy diferentes valores de evaluación inicial.

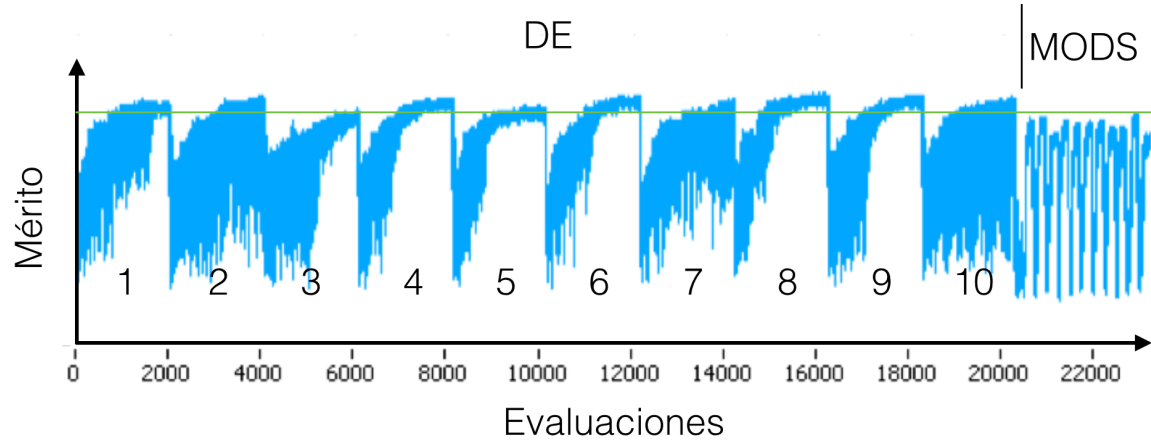


Figura 5.53: Convergencias *DE* y *MODS*. Podemos observar la diversidad en el comportamiento de *DE* en cada lanzamiento, sorprende la diferencia entre las dispersiones de población, cómo la observada entre el 4 y décimo lanzamiento. *MODS*, pese a partir de fase plana, presenta diferentes puntos de partida, debido al ruido existente en el sistema.

Las trazas de *FROG* de los mejores lanzamientos, Figura 5.54, nos muestran cómo *DE* y *MODS* generan distribuciones de energía con 1ps de separación. La principal diferencia es que *DE* genera un tren con mas subpulsos. En la figura se muestra también la señal temporal integrada, en la que se aprecia claramente cómo los pulsos conseguidos por *DE* son de menor duración que los obtenidos por *MODS*. Las trazas de *FROG* nos indican que *MODS* no puede alcanzar el mismo grado de ajuste que consiguió en los experimentos anteriores. Vemos energía distribuida entre los pulsos situados a 1 ps. El nivel de ruido ha impedido la distribución de esta energía en los tiempos adecuados. Este pobre resultado creemos que está relacionado a la inestabilidad del sistema experimental, que se ve reflejado en el ajuste de fases que se puede alcanzar.

*MODS* ofrece un resultado diferente al obtenido en las anteriores ocasiones. Si atendemos a las fases obtenidas, Figura 5.55 podemos ver cómo *MODS* sólo consigue ajustar las fases en la primera mitad del *SLM*, allí donde el salto de fase necesario es mayor y, probablemente, mas detectable su aportación temporal. Vimos cómo en el apartado anterior la fase óptima estaba compuesta por una componente lineal, encargada de dividir el pulso con la separación adecuada, y una sinusoidal, responsable de la generación del tren de pulsos y compresión de los mismos. Bajo las condiciones experimentales en las que se realizó el experimento no es posible realizar el ajuste de

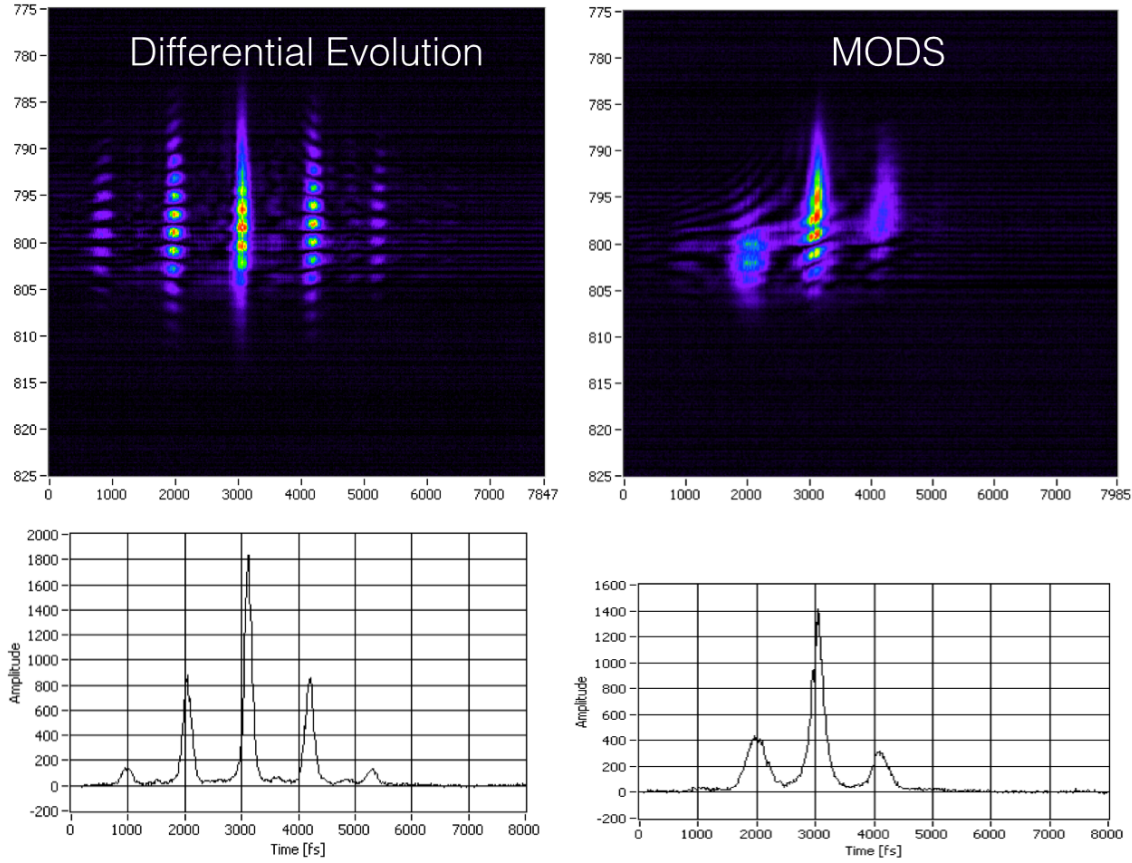


Figura 5.54: Trazas de *FROG* de las mejores soluciones alcanzadas por *DE* y *MODS*, así cómo sus intensidades temporales integradas

la componente sinusoidal.

En cambio, la fase conseguida por *DE* es aproximadamente sinusoidal con una cierta pendiente. Esta pendiente puede ser ignorada ya que sólo implica un desplazamiento temporal y no una modulación, pero es interesante comprobar cómo está constituida por fases entre 0 y  $\pi$  rad. En el apartado 5.1.2, página 91 se mostró cómo trabajar con fases situadas por encima de  $\pi$  rad podía introducir ruido en forma de modulación de amplitud.

*DE* presenta una mejor respuesta en este caso ya que su adaptación al ruido es superior a la de *MODS*. Para *MODS*, por su carácter determinista, el problema del ruido, tanto derivado de la modulación residual de amplitud cómo de fluctuaciones de señal es mas crítico. Imposibilita la observación del efecto debido a la estructuración temporal y el ajuste de fase solo se produce en determinados puntos del espectro.

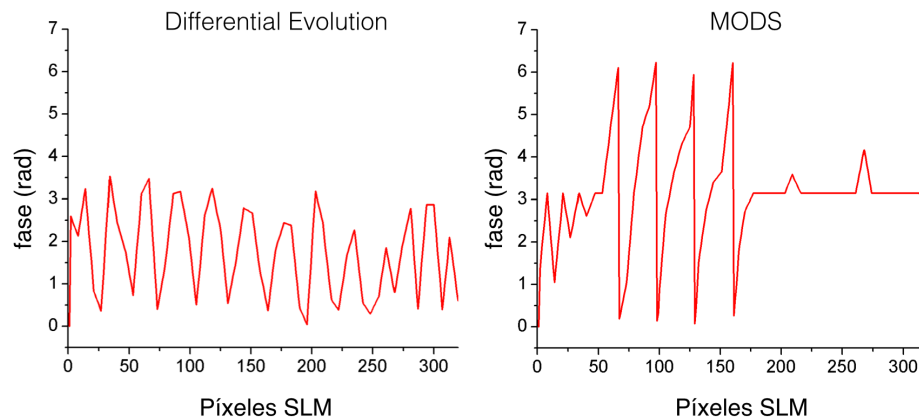


Figura 5.55: Fases obtenidas experimentalmente por *DE* y *MODS*. *DE* obtiene una fase esencialmente sinusoidal.

#### 5.5.2.d. Análisis del comportamiento de *MODS* frente al ruido

Para entender el comportamiento mostrado por *MODS* en el caso anterior hemos realizado una optimización computacional utilizando el esquema mostrado en la Figura 4.10, página 80, utilizando como observable  $\int \left| \tilde{E}(t) \tilde{E}(t - \tau) \right|^2 d\tau$ . El valor de dicha integral es proporcional a la señal que se detectaría debido a la birrefringencia. Este observable se optimiza utilizando *MODS/50/p/s/4-3-3*, 50 nodos con barrido secuencial, partiendo de una fase plana con valor  $\pi$ , mediante 4 barridos con 3 saltos de ajuste en cada uno.

Para emular las condiciones reales introducimos el ruido experimental como una variación de amplitud de un 10 % sobre la envolvente espectral, aplicada con una probabilidad uniforme. Las curvas de optimización seguidas por *MODS* con este ruido espectral (rojo) y sin él (negro) se muestran en la Figura 5.56. En la figura se han añadido también la estructura temporal de pulso y las fases obtenidas por *MODS* al finalizar cada uno de los barridos, su relación con los barridos está señalada con colores. En las curvas de optimización se han trazado todas las evaluaciones realizadas por el algoritmo.

En ausencia de ruido espectral la optimización observamos el comportamiento sigmoideal correspondiente al barrido secuencial, las fluctuaciones que se observan en la curva son debidas a las medidas de exploración realizadas en el ajuste de los nodos. Al principio y final de los barridos, colas espectrales, no se aprecian estas fluctuaciones<sup>91</sup> ya que no se dispone de energía. En cada uno de los barridos *MODS* utiliza un salto inicial de exploración menor ( $\sigma$ ), esto ocasiona que las fluctuaciones que vemos también sean menores a lo largo de los barridos. Se logra mejorar el mérito

<sup>91</sup>En realidad si existen pero su amplitud es mínima, no se aprecian en la imagen por la escala

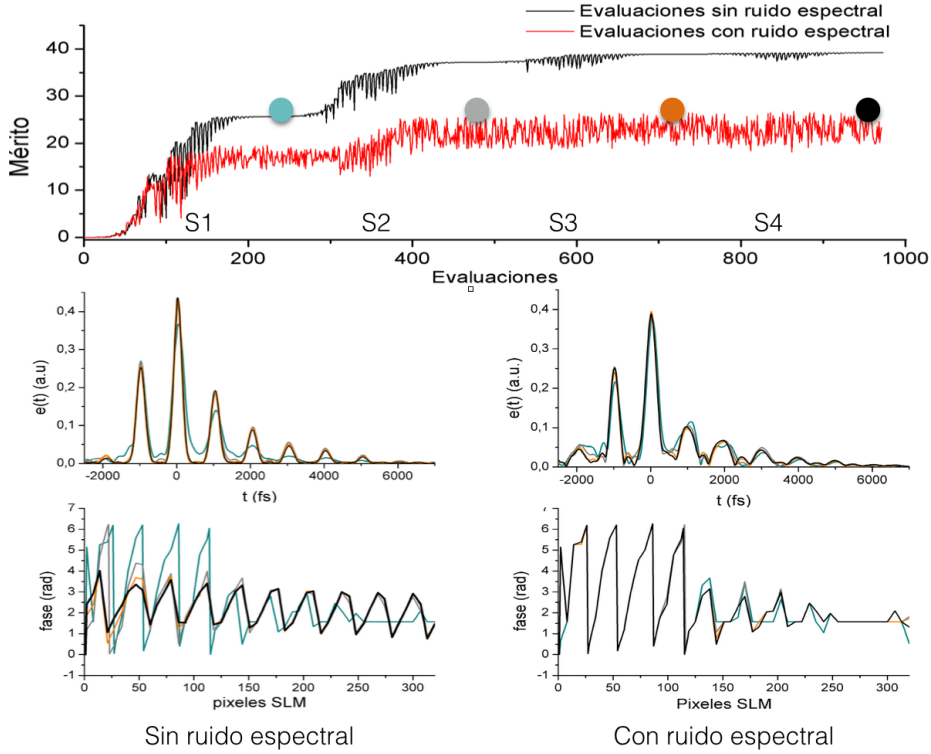


Figura 5.56: Resultados temporal y de fase obtenidos por *MODS* en simulaciones en el problema analizado, con y sin presencia de ruido en forma de modulación de amplitud espectral aleatoria de un 10 %. Ante la presencia de ruido la capacidad de toma de decisiones en la optimización marginal se anula y el algoritmo se detiene en una solución intermedia.

en todos los barridos.

Cuando introducimos ruido espectral la optimización se degenera. Se observa cómo el ruido afecta a la señal de mérito a lo largo de todos los nodos, independientemente de la energía espectral asociada. Ahora sólo conseguimos optimizar en los dos primeros barridos, con un rendimiento claramente inferior al conseguido sin el ruido espectral. En el tercer y cuarto barrido, los cambios que se producen en la exploración quedan dentro de la banda de ruido, las decisiones no se pueden tomar correctamente, y el camino hacia el óptimo global no se puede encontrar.

Si observamos el efecto sobre las fases y formas temporales obtenidas, vemos cómo el recorrido de fases obtiene, en el primer barrido y bajo ambas condiciones, una fase con conformación muy similar a la obtenida por *GS* en los resultados experimentales. Sin ruido espectral la solución se va refinando en los diversos barridos, obteniéndose la solución de función sinusoidal de fase, muy similar a la obtenida por *DE* en el experimento anterior. Con el ruido espectral introducido, la optimización se detiene en una

fase que divide el pulso de forma poco eficiente, haciendo imposible su refinamiento.

Las fases obtenidas durante el primer barrido son similares a las obtenidas en los experimentos realizados en el laboratorio, donde hemos tenido que utilizar *MODS* con un solo barrido, ya que en los barridos posteriores no lograba optimizar la fase de ningún nodo. La presencia de ruido lo hacia imposible y no era posible refinar la fase hasta su forma óptima, pero el camino seguido en la optimización era el correcto.

### 5.5.3. Conclusiones

Hemos realizado este experimento de *FROG desbalanceado* en la búsqueda de un problema de optimización que requiera como solución un pulso estructurado. En otras palabras, un pulso cuya solución óptima sea diferente a la del pulso mejor comprimido temporalmente. El pulso láser conformado debe interaccionar consigo mismo a través de dos caminos ópticos diferentes para conseguir maximizar la generación de efecto Kerr, un efecto no-lineal de tercer orden. La solución a este problema es diferente a obtener el pulso mas corto posible. En este caso la optimización debe conseguir distribuir la energía contenida en el pulso en paquetes con una separación temporal determinada por la diferencia de longitudes de los caminos ópticos. Además, existe la restricción derivada de la no existencia de modulación de amplitud.

El resultado de la optimización de *MODS* supera ampliamente al resultado ofrecido por el *AG*, presentando una mejor calidad de la solución final y una menor dispersión entre los distintos lanzamientos. Por su parte, *DE* presenta unos tiempos de convergencia mejores a los ofrecidos por *AG*. En la comparación *MODS-DE* podemos ver como las condiciones experimentales son extremadamente críticas en el caso de *MODS*. Aunque el sistema experimental es idéntico, las diferentes condiciones de ruido en las que se puede encontrar el sistema pueden hacer inaccesible la solución para *MODS*.

No obstante, aunque la presencia de ruido experimental afecta notablemente al rendimiento de *MODS*, comprobamos como sus bases algorítmicas son válidas en problemas que implican la autointerferencia del pulso. Cuando las condiciones experimentales de ruido son lo suficientemente bajas ofrece resultados altamente satisfactorios.



## 5.6. Visualización del espacio de soluciones

La topología del espacio de soluciones es una base fundamental de *MODS*. Partimos de la presunción de la existencia de un solo máximo/mínimo accesible a través de la optimización marginal. En esta sección mostramos el aspecto experimental que tiene el espacio de soluciones en el problema de *FROG desbalanceado* 5.5.

El espacio de soluciones es un hipercubo  $n$ -dimensional con una longitud de  $2\pi$  en cada una de las dimensiones. No podemos observarlo de forma completa, con lo que realizamos una visualización sobre tres dimensiones. Para ello utilizamos una fase compuesta por 25 nodos y exploramos el valor de costo que ofrecen las variaciones de los nodos centrales 13, 14 y 15 que denominamos  $\phi_a, \phi_b$  y  $\phi_c$  respectivamente. Medimos el espacio de soluciones que conforman muestreando cada uno de ellos en 40 puntos de fase entre 0 y  $2\pi$ , 64000 muestras en total. El proceso de evaluación del espacio se encuentra representado en la Figura 5.57 en la que se ha representado la variación de estos tres nodos sobre 4 puntos (64 muestras en total), el nodo  $\phi_a$  se representa lineal por claridad de la figura. Cada posible valor de fase de uno de los nodos se evalúa frente todas las combinaciones posibles de los otros dos.

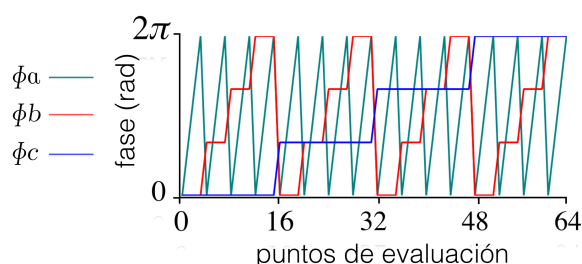


Figura 5.57: Representación de la secuencia de exploración de los valores de los nodos  $\phi_a, \phi_b$  y  $\phi_c$  que se ha seguido para muestrear el espacio de soluciones. Reducción a 4 valores por nodo. Los valores de  $\phi_a$  no se muestran discretos por claridad de la imagen.

En la Figura 5.58 vemos el registro de señal experimental obtenido en la medición experimental, 40 puntos de fase para cada nodo nos proporcionan 64.000 puntos de evaluación. Se aprecia cómo el aspecto global es similar en toda la extensión de las medida, una sucesión de máximo y mínimos que presentando diferente comportamiento local. En general muestra una sucesión de curvas con un solo máximo y un solo mínimo cada 40 muestras, tal y cómo se esperaba que se comportara el espacio de búsqueda en el estimamos que *MODS* se desenvuelve (fig.2, página 73). Se observa cómo el máximo puede estar localizado en una cuenca muy aguda (fig.5.58.a) u ofrecer cierta planitud (fig.5.58.e), pero se mantiene la alternancia máximo-mínimo a lo

largo de todo el registro. La utilización del enrollado de fases introduce discontinuidades en ciertos puntos (fig.5.58.b,c), que se muestran evidentes a todas las escalas de visualización. Son saltos de valor de mérito bruscos.

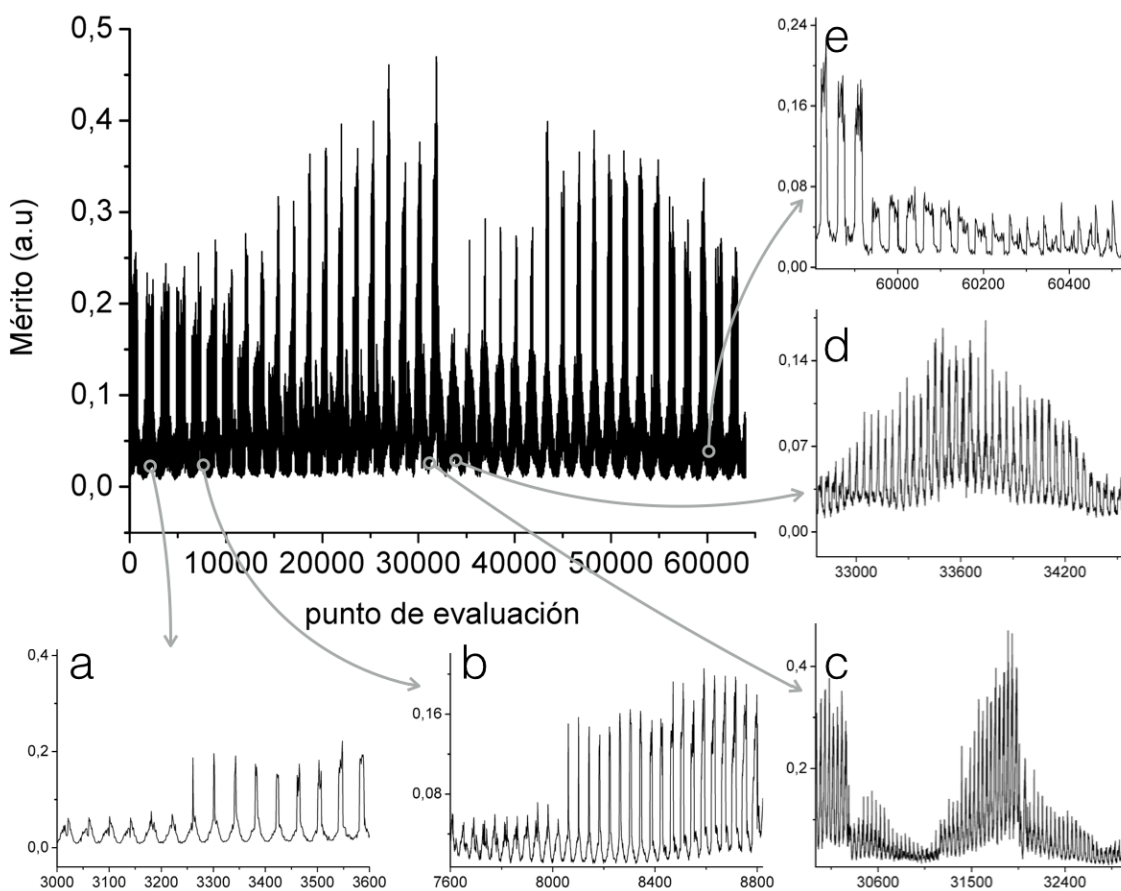


Figura 5.58: Registro de medición de los tres nodos a estudio con un muestreo de 40 puntos por nodo, 64000 muestras. Se puede observa cómo en toda la medida existe una sucesión de máximos y mínimo.

Para clarificar esta visualización en la Figura 5.59 se han distribuido estas 64.000 medidas en 40 imágenes de 40x40 píxeles, a los que se le ha aplicado una interpolación para suavizar la imagen. Cada uno de los ejes de las imágenes corresponden a la exploración de dos de los nodos( $\phi_a, \phi_b$ ), entre cada imagen sucesiva se ha variado el tercer nodo ( $\phi_c$ ). Las líneas diagonales que se aprecian son producto de los saltos por enrollado de fases. Se puede apreciar cómo a medida que se modifica el valor del tercer nodo (cambio de imagen) el máximo (rojo) se desplaza gradualmente, presentando cierta continuidad y localización. Disponemos de un solo máximo en cada uno de los ejes.



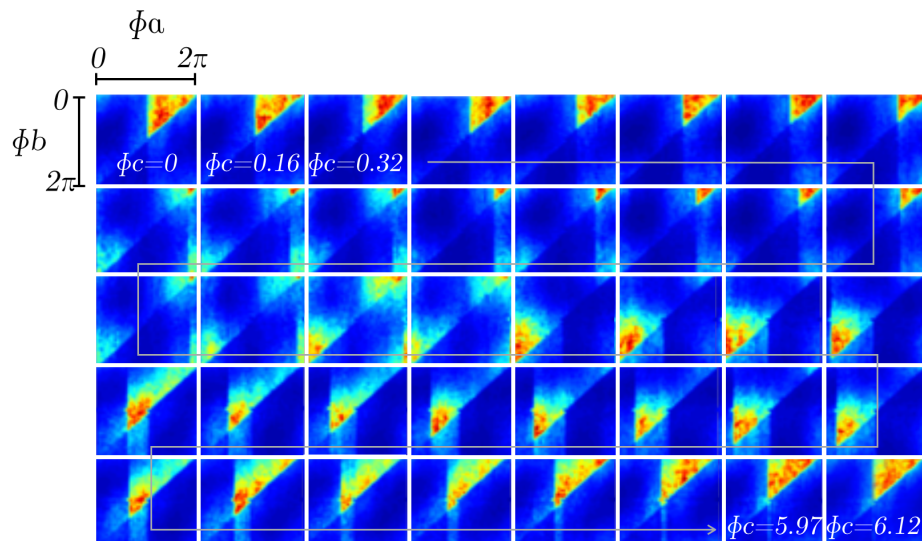


Figura 5.59: Mapas de soluciones correspondientes a la función de mérito en función de dos de los nodos. La evolución de las imágenes corresponde a la evolución del tercer nodo.

Para poder hacer una visualización completa del aspecto que presenta el cubo de datos que se ha muestreado, en la Figura 5.60 se ha compuesto un volumen a partir de las imágenes mostradas en la Figura 5.59. Cada una de las aristas de este cubo corresponde a uno de los nodos explorados, representados como  $\Phi_a, \Phi_b$  y  $\Phi_c$ . Ahora podemos apreciar cómo realmente las soluciones se agrupan. Para mejorar la visualización se ha aplicado transparencia permitiendo la visibilidad sólo de algunos valores de mérito. Vemos cómo los valores de mérito se agrupan formando superficies continuas. Realmente Existe (en general) un gradiente desde cualquier punto de este espacio que nos puede conducir al máximo. Se aprecia en la estructura 1D (fig 6solutionsScanVolumen), 2D (fig.5.59) y en la visión volumétrica que nos ofrece esta figura.

Las características tan particulares que predice la *QCT*, cómo es la multimodalidad de la solución la no existencia de trampas en el espacio se pueden apreciar. Esto es así aunque en el espacio que hemos explorado también está presente el problema geométrico de interferencia entre dos haces que presenta *FROG con desajuste temporal*.

Este espacio es dinámico, su conformación depende de las posiciones de fases de todos los nodos que conforman la fase. Por lo tanto se irá modificando a lo largo de la optimización de cada uno de los nodos, pero sus características topológicas generales se conservan, es lo que hace posible que *MODS* funcione.

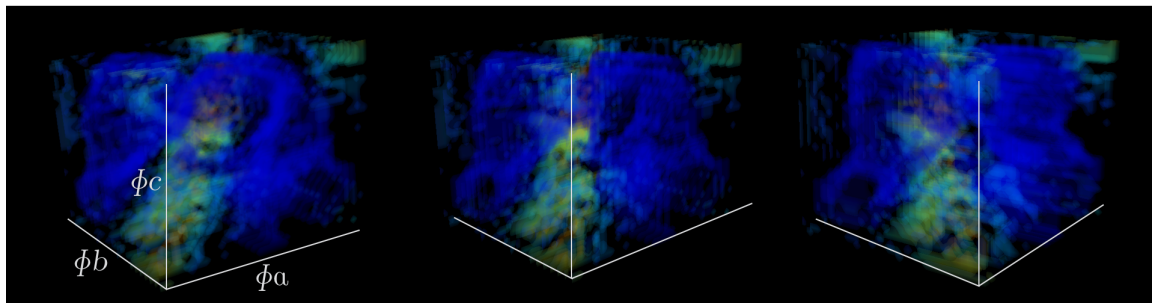


Figura 5.60: Visualización del espacio de soluciones realizado a partir de las muestras obtenidas del espacio definido por tres nodos  $\Phi_a, \Phi_b$  y  $\Phi_c$ . Se muestran el mismo espacio desde tres puntos de vista diferente

## Capítulo 6

### Conclusiones y desarrollo futuro

## 6.1. Conclusiones

El objetivo de esta tesis ha sido aplicar métodos de optimización a procesos de interacción no-lineales producto de la interacción de pulso ultracortos con materiales. Para ello se ha implementado un sintetizador de pulsos mediante manipulación de fase espectral y utilizado un sistema de control en bucle adaptativo.

El enfoque habitualmente utilizado en este tipo de problemas es la aplicación de un algoritmo evolutivo en el bucle adaptativo. Dichos algoritmos ofrecen buenas soluciones, pero a cambio necesitan un elevado número de evaluaciones, cifrado en miles o decenas de miles, para lograr la convergencia a la solución. Sin embargo, la naturaleza de determinados problemas exige, por limitaciones experimentales, la utilización de algoritmos de optimización eficientes que requieran un reducido número de evaluaciones de prueba. Bajo estas condiciones la utilización de la aproximación evolutiva puede ser inviable.

En el campo de los evolutivos se mostrado como Differential Evolution ofrece buenas propiedades de convergencia e inmunidad frente al ruido, presentandose como un algoritmo prometedor para este tipo de aplicaciones.

A lo largo de esta tesis se ha diseñado e implementado un algoritmo alternativo y novedoso para el control en bucle adaptativo en problemas de optimización de fenómeno ópticos no-lineales, que logra reducir el número de evaluaciones necesarias a solo unos centenares, aun utilizando un gran número de variables para el control de la fase. Dicho algoritmo, denominado *MODS*, utiliza características del espacio de control y de la topología del espacio de soluciones de los fenómenos implicados en la interacción no-lineal. El espacio de control nos permite utilizar optimización marginal, es decir, optimizar una a una las variables implicadas. La topología esperada del espacio de soluciones, basada en ideas derivadas de teoría de control cuántico, nos dice que el problema puede ser visto como un problema de gradiente. Si bien su comportamiento es crítico ante determinadas condiciones experimentales (ruido y modulación de amplitud), se han conseguido unos resultados extremadamente satisfactorios en todos los experimentos realizados.

Se ha mostrado la eficiencia y viabilidad de aplicación de *MODS* sobre una amplia muestra de fenómenos ópticos no-lineales. En sólidos se ha conseguido la optimización de absorción de dos fotones y birrefringencia inducida por efecto Kerr. Asimismo se ha demostrado su capacidad para resolver un problema geométrico que implica la optimización de efecto Kerr mediante el reparto de la energía del pulso en paquetes separados temporalmente. En la nano escala se ha mostrado la capacidad de optimizar generación de segundo armónico sobre nanopartículas y en fase gas se ha mostrado la viabilidad de su aplicación sobre fenómenos de alineamiento molecular.

El bajo número de evaluaciones que requiere *MODS* abre la puerta a su aplicación sobre experimentos destructivos, como puede ser el procesado por láser de materiales

en superficie y en volumen. En superficie se puede abordar la optimización de profundidad de cráter en pulso único o la maximización de contraste óptico. En volumen se podría optimizar las modificaciones de cambio de índice.

Los resultados obtenidos nos hacen pensar que *MODS* podría ser aplicable a multitud de procesos de control de fenómenos tanto físicos como químicos, como pueden ser la generación de altos armónicos, procesos de absorción multifotónica, transiciones de estados excitados de moléculas o reacciones de fotodisociación en gases.

## 6.2. Desarrollo Futuro

A continuación se plantean una serie de puntos que consideramos deberían explorarse en el desarrollo futuro de *MODS*.

- La utilización de densidades no uniformes de nodos en función de la energía espectral puede proporcionar una ventaja al poder centrar el esfuerzo de optimización en aquellas zonas donde la contribución energética es mayor.
- Explorar la utilización de diferentes densidades de nodos dependiendo del barrido en el que se encuentra la optimización. Comenzar así con un número reducido de nodos (que permiten un mayor manejo de energía) y proseguir con un número mayor. Esto puede permitir un mejor ajuste de la fase.
- El tamaño del salto inicial de exploración de nodo por barrido,  $\sigma$ , puede suponer diferencias en la calidad de la solución alcanzada y en la capacidad para enfrenarse al ruido. La utilización de diferentes esquemas de elección de  $\sigma$  debería ser explorada.
- Uso de un esquema combinado *MODS*-Evolutivo. *MODS* presentan una buena aceleración en la aproximación al óptimo, pero en condiciones de alto ruido no es capaz de realizar un ajuste final de la solución. La solución aportada por *MODS* puede ser utilizada como semilla de inicialización de población para un evolutivo, suponiendo el ahorro de unas miles de evaluaciones.
- Realizar la optimización marginal, ajuste de cada nodo, mediante un algoritmo evolutivo. Esta variante puede proporcionar robustez frente al ruido, pero a costa de incrementar el número de evaluaciones requeridas.
- En un principio la filosofía de optimización de *MODS* podría aplicarse a sistemas con modulación mediante amplitud y fase. Su utilización mediante optimización alternativa de modulación y fase alternativamente, a nivel de barrido o de nodo, debería explorarse.

## Apéndice A

### Publicaciones asociadas

## A.1. Publicaciones y Comunicaciones a Congresos Internacionales relacionadas con el desarrollo y utilización de Algoritmo “Multiple, one-dimensional search” (MODS)

### Publicaciones en revistas internacionales:

1. M. Galvan-Sosa, J. Portilla, J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, L. Moreno, and J. Solis, "Multiple One-Dimensional Search (MODS) algorithm for fast optimization of laser-matter interaction by phase-only fs-laser pulse shaping," *Appl. Phys. B* (2014). Publicado "online" el 18 de Enero de 2014. DOI: 10.1007/s00340-013-5757-y
2. M. Galvan-Sosa, J. Portilla, J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, L. Moreno, A. Ruiz de la Cruz, and J. Solis, "Optimization of ultra-fast interactions using laser pulse temporal shaping controlled by a deterministic algorithm," *Appl. Phys. A* 114, 477–484 (2013).
3. M. Galvan-Sosa, J. Portilla, J. Siegel, L. Moreno and J. Solis, "Performance of Multiple One-Dimensional Search (MODS) versus Differential Evolution (DE) algorithms in the optimization of non-linear optical interactions controlled by a phase-only temporal pulse-shaping device", *J. Glob. Optim.* (to be submitted)
4. P.M. Roque, M. Galvan-Sosa, Nicolò Accanto, Niek F. van Hulst "Maximizing the two photon absorption from a single quantum emitter", (to be submitted)

### Comunicaciones en Congresos Internacionales:

1. E-MRS, Spring Meeting Symposium: V, "Laser materials interactions for micro and nano applications" M. Galvan-Sosa, J. Portilla, J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, L. Moreno, J. Solis "Pre-determined step search versus Evolutionary algorithms in optimal control of fs-laser pulse shaping: searching with a waltz" (Oral) Estrasburgo, Francia, (Mayo 2013)
2. E-MRS, Spring Meeting Symposium: V, "Laser materials interactions for micro and nano applications" M. Galvan-Sosa, J. Siegel, L. Moreno, J. Solis "Mapping the solution landscape in "model" problems in fs-laser temporal shaping optimization" (Poster) Estrasburgo, Francia, (Mayo 2013)
3. EMRS'2012 Symposium: V, "Laser materials interactions for micro and nano applications" M. Galvan-Sosa, J. Portilla, J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, L. Moreno, J. Solis "Optimization of Two Photon Absorption Using Temporal



Shaping with a Non-evolutionary Algorithm” (Oral) Estrasbrugo, Francia (Mayo 2012)

## **A.2. Publicaciones y Comunicaciones a Congresos Internacionales relacionadas con la utilización de técnicas de conformación temporal de pulsos ultracortos**

### **Publicaciones en revistas internacionales:**

1. D. Puerto, J. Siegel, W. Gawelda, M. Galvan-Sosa, L. Ehrentaut, J. Bonse and J. Solis “Dynamics of plasma formation, relaxation and topography modification induced by femtosecond laser pulses in crystalline and amorphous dielectrics” *J. Opt. Soc. Am. B* 27, 1065-76 (2010)
2. J. Hernandez-Rueda, D. Puerto, J. Siegel, M. Galvan-Sosa, and J. Solis “Plasma Dynamics and Structural Modifications Induced by Femtosecond Laser Pulses in Quartz” *Appl.Surf.Sci.*258, 9389– 9393, (2012)
3. J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, D. Puerto, M. Galvan-Sosa, W. Gawelda, and J. Solis “Ad-hoc design of temporally shaped fs laser pulses based on plasma dynamics for deep ablation in fused silica” *Appl.Phys.A* 112, 185-189 (2013) Published online 19/09/2012, <http://dx.doi.org/10.1007/s00339-012-7238-2>
4. J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, M. Galvan-Sosa, A. Ruiz de la Cruz, J. Solis “Surface structuring of fused silica with temporally shaped ultrashort laser pulses” *J. Opt. Soc. Am. B* 30, 1352-1356 (2013)
5. J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, M. Garcia-Lechuga, A. Ruiz de la Cruz, M. Galvan-Sosa, J. Solis “Controlling ablation mechanisms in sapphire by irradiation with temporally shaped fs-laser pulses” (to be submitted)

### **Comunicaciones a Congresos Internacionales:**

1. 13th International Symposium on Laser Precision Microfabrication, LPM2012 J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, M. Galvan-Sosa, W. Gawelda, and J. Solis “Plasma dynamics during the ablation of fused silica with temporally shaped femtosecond pulses” (Oral) Washington, DC (EEUU) (Junio 2012)

2. EMRS'2012 Symposium: V, "Laser materials interactions for micro and nano applications" J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, M. Galvan-Sosa, W. Gawelda, J. Solis "Plasma dynamics during the ablation of silica with temporally shaped femtosecond pulses" (Oral) Estrasbrugo, Francia (Mayo 2012)

# Bibliografía

- [1] M. Wollenhaupt, L. Englert, A. Horn, and T. Baumert, “Temporal femtosecond pulse tailoring for nanoscale laser processing of wide-bandgap materials,” *Proceedings of SPIE*, vol. 7600, p. 76000X, 2010.
- [2] R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbügel, B. A. Richman, and D. J. Kane, “Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 68, no. 9, pp. 3277–3295, 1997.
- [3] O. Shir and T. Bäck, “The second harmonic generation case-study as a gateway for es to quantum control problems,” *Proceedings of the 9th annual conference on Genetic and evolutionary computation*, pp. 713–721, 2007.
- [4] N. Accanto, J. B. Nieder, L. Piatkowski, M. Castro-Lopez, F. Pastorelli, D. Brinks, and N. F. van Hulst, “Phase control of femtosecond pulses on the nanoscale using second harmonic nanoparticles,” *Light: Science & Applications*, vol. 3, p. e143, Jan. 2014.
- [5] N. Xu, J. Li, J. Li, Z. Zhang, and Q. Fan, “Polarization Detection of Molecular Alignment Using Femtosecond Laser Pulse,” in *Proceedings of the 2012 Second ...*, 2012.
- [6] A. Weiner, “Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 71, p. 1929, 2000.
- [7] T. Hornung, R. Meier, and R. de Vivie-Riedle, “Coherent control of the molecular four-wave-mixing response by phase and amplitude shaped pulses 10.1016/S0301-0104(01)00254-3 : Chemical Physics — ScienceDirect.com,” *Chemical Physics*, 2001.
- [8] R. Fanciulli, A. Weiner, M. Dignam, D. Meinhold, and K. Leo, “Coherent control of Bloch oscillations by means of optical pulse shaping,” *Physical Review B*, vol. 71, Apr. 2005.

- 
- [9] J. Herek, W. Wohlleben, R. Cogdell, D. Zeidler, and M. Motzkus, “Quantum control of energy flow in light harvesting,” *Nature*, vol. 417, no. 6888, pp. 533–535, 2002.
- [10] R. S. Judson and H. Rabitz, “Teaching lasers to control molecules,” *Physical Review Letters*, vol. 68, pp. 1500–1503, 1992.
- [11] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, “Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses,” *Science*, vol. 282, no. 5390, p. 919, 1998.
- [12] L. Kurtz and R. de Vivie-Riedle, “Applying optimal control theory for elements of quantum computation in molecular systems 10.1016/S0009-2614(01)00748-5 : Chemical Physics Letters — ScienceDirect.com,” *Chemical Physics Letters*, 2001.
- [13] R. Stoian, M. Wollenhaupt, T. Baumert, and I. Hertel, “Temporal Pulse Tailoring in Ultrafast Laser Manufacturing Technologies,” *Laser Precision Microfabrication*, pp. 121–144, 2010.
- [14] L. Englert, B. Rethfeld, L. Haag, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran, and T. Baumert, “Control of ionization processes in high band gap materials via tailored femtosecond pulses,” *Opt. Express*, vol. 15, p. 17855, 2007.
- [15] A. M. Weiner, “Ultrafast optical pulse shaping: A tutorial review,” *Optics Communications*, vol. 284, pp. 3669–3692, July 2011.
- [16] M. Wollenhaupt, M. Krug, J. Köhler, T. Bayer, C. Sarpe-Tudoran, and T. Baumert, “Photoelectron angular distributions from strong-field coherent electronic excitation,” *Applied Physics B*, vol. 95, pp. 245–259, Feb. 2009.
- [17] A. Rundquist, A. Efimov, and D. Reitze, “Pulse shaping with the Gerchberg-Saxton algorithm,” *JOSA B*, vol. 19, no. 10, pp. 2468–2478, 2002.
- [18] M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Bayer, and T. Baumert, “Femtosecond strong-field quantum control with sinusoidally phase-modulated pulses,” *Physical Review A*, vol. 73, p. 063409, June 2006.
- [19] J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, M. Galvan-Sosa, A. Ruiz de la Cruz, and J. Solís, “Surface structuring of fused silica with asymmetric femtosecond laser pulse bursts,” *JOSA B*, vol. 30, no. 5, p. 1352, 2013.
- [20] T. Baumert, T. Brixner, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, “Femtosecond pulse shaping by an evolutionary algorithm with feedback,” *Applied Physics B: Lasers and Optics*, vol. 65, no. 6, pp. 779–782, 1997.

- [21] D. Meshulach, D. Yelin, and Y. Silberberg, "Adaptive real-time femtosecond pulse shaping," *JOSA B*, vol. 15, no. 5, pp. 1615–1619, 1998.
- [22] A. Jafarpour, J. Savolainen, R. Jong, J. Middag, D. Sprünken, P. Walle, D. Yang, and J. Herek, "Robust orthogonal parameterization of evolution strategy for adaptive laser pulse shaping," *Optics Express*, vol. 17, no. 14, pp. 11986–12000, 2009.
- [23] J. Roslund and H. Rabitz, "Gradient algorithm applied to laboratory quantum control," *Physical Review A*, vol. 79, May 2009.
- [24] F. G. Omenetto, B. P. Luce, and A. J. Taylor, "Genetic algorithm pulse shaping for optimum femtosecond propagation in optical fibers," *JOSA B*, 1999.
- [25] U. Siegner, M. Haiml, J. Kunde, and U. Keller, "Adaptive pulse compression by two-photon absorption in semiconductors," *Optics letters*, vol. 27, no. 5, pp. 315–317, 2002.
- [26] J. Prawiharjo, N. K. Daga, and R. Geng, "High fidelity femtosecond pulses from an ultrafast fiber laser system via adaptive amplitude and phase pre-shaping," *Advanced Solid- ...*, 2009.
- [27] O. Shir, J. Kok, T. Bäck, and M. Vrakking, "Gaining Insights into Laser Pulse Shaping by Evolution Strategies," *Bio-inspired Modeling of Cognitive Tasks*, pp. 467–477, 2007.
- [28] R. de Nalda, C. Horn, M. Wollenhaupt, M. Krug, L. Bañares, and T. Baumert, "Pulse shaping control of alignment dynamics in N<sub>2</sub>," *Journal of Raman Spectroscopy*, vol. 38, no. 5, pp. 543–550, 2007.
- [29] C. Siedschlag, O. Shir, and T. Back, "Evolutionary Algorithms in the Optimization of Dynamic Molecular Alignment," *Optics Communications*, pp. 511–518, May 2011.
- [30] M. Tsubouchi and T. Momose, "Rovibrational wave-packet manipulation using shaped midinfrared femtosecond pulses toward quantum computation: Optimization of pulse shape by a genetic algorithm," *Physical Review A*, vol. 77, p. 052326, May 2008.
- [31] J. Vesterstrom and R. Thomsen, "A comparative study of differential evolution, particle swarm optimization, and evolutionary algorithms on numerical benchmark problems," *Evolutionary computation*, 2004.

- [32] R. Storn and K. Price, "Differential evolution—a simple and efficient heuristic for global optimization over continuous spaces," *Journal of global optimization*, vol. 11, no. 4, pp. 341–359, 1997.
- [33] P. French, "The generation of ultrashort laser pulses," *Reports on Progress in Physics*, vol. 58, p. 169, 1995.
- [34] U. Morgner, F. X. Kärtner, S. H. Cho, Y. Chen, and H. A. Haus, "Sub-two-cycle pulses from a Kerr-lens mode-locked Ti: sapphire laser," *Optics . . .*, 1999.
- [35] G. N. Gibson, B. E. Bouma, R. Klank, and F. Gibson, "Electro-optically cavity-dumped ultrashort-pulse Ti: sapphire oscillator," *Optics letters*, 1996.
- [36] J. C. Diels and W. Rudolph, "Ultrashort laser pulse phenomena," 2006.
- [37] A. Monmayrant, S. Weber, and B. Chatel, "A newcomer's guide to ultrashort pulse shaping and characterization," *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 43, p. 103001, May 2010.
- [38] R. Sutherland, *Handbook of nonlinear optics*. Optical Engineering, New York, NY: Dekker, 2003.
- [39] R. del Coso and J. Solis, "Relation between nonlinear refractive index and third-order susceptibility in absorbing media," *JOSA B*, 2004.
- [40] C. Igel and M. Toussaint, "A no-free-lunch theorem for non-uniform distributions of target functions," *Journal of Mathematical Modelling and Algorithms*, vol. 3, no. 4, pp. 313–322, 2004.
- [41] C. Gollub and R. de Vivie-Riedle, "Modified ant-colony-optimization algorithm as an alternative to genetic algorithms," *Physical Review A*, vol. 79, p. 021401, Feb. 2009.
- [42] M. Roth, J. Roslund, and H. Rabitz, "Assessing and managing laser system stability for quantum control experiments," *Review of Scientific Instruments*, vol. 77, no. 8, p. 083107, 2006.
- [43] A. M. Weiner, "Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators," *Review of Scientific Instruments*, vol. 71, no. 5, pp. 1929–1960, 2000.
- [44] A. M. Weiner, "Femtosecond Optical Pulse Shaping and Procesing," *Pergamon*, pp. 1–77, Feb. 1995.

- [45] M. Wefers and K. Nelson, “Analysis of programmable ultrashort waveform generation using liquid-crystal spatial light modulators,” *JOSA B*, vol. 12, no. 7, pp. 1343–1362, 1995.
- [46] A. M. Weiner and D. Leaird, “Generation of terahertz-rate trains of femtosecond pulses by phase-only filtering,” *Optics letters*, 1990.
- [47] A. Efimov, C. Schaffer, and D. Reitze, “Programmable shaping of ultrabroad-bandwidth pulses from a Ti: sapphire laser,” *JOSA B*, 1995.
- [48] J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, D. Puerto, M. Galvan-Sosa, W. Gawelda, and J. Solis, “Ad-hoc design of temporally shaped fs laser pulses based on plasma dynamics for deep ablation in fused silica,” *Applied Physics A*, vol. 112, pp. 185–189, Sept. 2012.
- [49] A. Präkelt, M. Wollenhaupt, A. Assion, C. Horn, C. Sarpe-Tudoran, M. Winter, and T. Baumert, “Compact, robust, and flexible setup for femtosecond pulse shaping,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 74, no. 11, p. 4950, 2003.
- [50] M. Galvan-Sosa, J. Portilla, J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, L. Moreno, and J. Solis, “Multiple One-Dimensional Search (MODS) algorithm for fast optimization of laser–matter interaction by phase-only fs-laser pulse shaping,” *Applied Physics B*, Jan. 2014.
- [51] T. Brixner and G. Gerber, “Femtosecond polarization pulse shaping,” *Optics letters*, vol. 26, no. 8, pp. 557–559, 2001.
- [52] F. Frei, R. Bloch, and T. Feurer, “Influence of finite spatial resolution on single- and double-pass femtosecond pulse shapers,” *Optics letters*, vol. 35, no. 23, pp. 4072–4074, 2010.
- [53] F. Frei, A. Galler, and T. Feurer, “Space-time coupling in femtosecond pulse shaping and its effects on coherent control,” *The Journal of Chemical Physics*, vol. 130, no. 3, p. 034302, 2009.
- [54] B. Sussman, R. Lausten, and A. Stolow, “Focusing of light following a 4-f pulse shaper: Considerations for quantum control,” *Physical Review A*, vol. 77, p. 043416, Apr. 2008.
- [55] D. Brinks, R. Hildner, and F. Stefani, “Beating spatio-temporal coupling: implications for pulse shaping and coherent control experiments,” *Optics Express*, 2011.

- [56] C. Iaconis and I. Walmsley, "Self-referencing spectral interferometry for measuring ultrashort optical pulses," *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, vol. 35, pp. 501–509, Apr. 1999.
- [57] P. O'shea, M. Kimmel, X. Gu, and R. Trebino, "Highly simplified device for ultrashort-pulse measurement," *Optics letters*, 2001.
- [58] B. Fornberg and J. Zuev, "The Runge phenomenon and spatially variable shape parameters in RBF interpolation," *Computers & Mathematics with Applications*, vol. 54, pp. 379–398, Aug. 2007.
- [59] C. Horn, M. Wollenhaupt, M. Krug, T. Baumert, R. de Nalda, and L. Bañares, "Adaptive control of molecular alignment," *Physical Review A*, vol. 73, Mar. 2006.
- [60] M. P. A. Branderhorst, P. Londero, P. Wasylczyk, C. Brif, R. L. Kosut, H. Rabitz, and I. Walmsley, "Coherent Control of Decoherence," *Science*, vol. 320, pp. 638–643, May 2008.
- [61] M. Melanie, "An introduction to genetic algorithms," *Cambridge*, 1999.
- [62] R. L. Haupt and S. E. Haupt, *Practical Genetic Algorithms*. Newark, NJ: Wiley, 2004.
- [63] Holland, "AdaptatioAdaptation in natural and artificial systems: An introductory analysis with applications to biology, control, and artificial intelligence.n in natural and artificial systems: An introductory analysis with applications to biology, control, and artificial intelligence.," *U Michigan Press.*, May 1975.
- [64] A. E. Eiben, E. H. L. Aarts, and K. M. Van Hee, "Global convergence of genetic algorithms: A markov chain analysis," *Parallel Problem Solving from Nature*, vol. 496, pp. 3–12, June 1991.
- [65] R. Fanciulli, L. Willmes, J. Savolainen, P. van der Walle, T. Bäck, and J. Herrek, "Evolution strategies for laser pulse compression," *Proceedings of the Evolution artificielle, 8th international conference on Artificial evolution*, pp. 219–230, 2007.
- [66] R. Storn and K. Price, "Differential evolution—a simple and efficient heuristic for global optimization over continuous spaces," *Journal of global optimization*, vol. 11, no. 4, pp. 341–359, 1997.
- [67] T. Tušar and B. Filipič, "Differential evolution versus genetic algorithms in multiobjective optimization," *Evolutionary Multi-Criterion Optimization*, pp. 257–271, 2007.



- 
- [68] K. Price, R. M. Storn, and J. A. Lampinen, “Differential evolution a practical approach to global optimization,” 2005.
- [69] H. Fan and J. Lampinen, “A trigonometric mutation operation to differential evolution,” *Journal of global optimization*, vol. 27, no. 1, pp. 105–129, 2003.
- [70] R. de Nalda, C. Horn, M. Wollenhaupt, M. Krug, L. Bañares, and T. Baumert, “Pulse shaping control of alignment dynamics in N<sub>2</sub>,” *Journal of Raman Spectroscopy*, vol. 38, no. 5, pp. 543–550, 2007.
- [71] T.-S. Ho and H. Rabitz, “Why do effective quantum controls appear easy to find?,” *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, vol. 180, pp. 226–240, June 2006.
- [72] H. A. Rabitz, “Quantum Optimally Controlled Transition Landscapes,” *Science*, vol. 303, pp. 1998–2001, Mar. 2004.
- [73] W. Zhu and H. Rabitz, “Attaining optimal controls for manipulating quantum systems,” *International journal of quantum chemistry*, vol. 93, no. 2, pp. 50–58, 2003.
- [74] O. Shir, “Niching in Derandomized Evolution Strategies and its Applications in Quantum Control,” pp. 1–256, Feb. 2012.
- [75] Y. C. Ho, R. S. Sreenivas, and P. Vakili, “Ordinal optimization of DEDS,” *Discrete event dynamic systems*, 1992.
- [76] J. Kunde, B. Baumann, S. Arlt, F. Morier-Genoud, U. Siegner, and U. Keller, “Adaptive feedback control of ultrafast semiconductor nonlinearities,” *Applied Physics Letters*, vol. 77, no. 7, p. 924, 2000.
- [77] M. Hacker, G. Stobrawa, and T. Feurer, “Iterative Fourier transform algorithm for phase-only pulse shaping,” *Optics Express*, vol. 9, no. 4, pp. 191–199, 2001.
- [78] A. M. Weiner, S. oudin, D. Leaird, and D. Reitze, “Shaping of femtosecond pulses using phase-only filters designed by simulated annealing,” *Optical Society of America*, vol. 10, pp. 1112–1120, May 1993.
- [79] R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon, “Negative dispersion using pairs of prisms,” *Optics letters*, 1984.
- [80] J. Collier, C. Hernandez-Gomez, R. Allott, C. Danson, and A. Hall, “A single-shot third-order autocorrelator for pulse contrast and pulse shape measurements,” *Laser and particle beams*, vol. 19, no. 02, pp. 231–235, 2001.

- 
- [81] A. COUAIRON and A. MYSYROWICZ, “Femtosecond filamentation in transparent media,” *Physics Reports*, vol. 441, pp. 47–189, Mar. 2007.
- [82] O. G. Kosareva, V. P. Kandidov, A. Brodeur, and C. Y. Chien, “Conical emission from laser plasma interactions in the filamentation of powerful ultrashort laser pulses in air,” *Optics . . .*, 1997.
- [83] A. Brodeur and S. L. Chin, “Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media,” *JOSA B*, vol. 16, no. 4, pp. 637–650, 1999.
- [84] E. Hecht and A. Zajac, *Optics; 3rd ed.* Reading, MA: Addison-Wesley, 1998.
- [85] L. Le Xuan, C. Zhou, A. Slablab, D. Chauvat, C. Tard, S. Perruchas, T. Gacoin, P. Villeval, and J.-F. Roch, “Photostable Second-Harmonic Generation from a Single KTiOPO 4Nanocrystal for Nonlinear Microscopy,” *Small*, vol. 4, pp. 1332–1336, Sept. 2008.
- [86] R. Hildner, D. Brinks, F. D. Stefani, and N. F. van Hulst, “Electronic coherences and vibrational wave-packets in single molecules studied with femtosecond phase-controlled spectroscopy,” *Physical Chemistry Chemical Physics*, vol. 13, no. 5, p. 1888, 2011.
- [87] D. Brinks, R. Hildner, F. D. Stefani, and N. F. van Hulst, “Coherent control of single molecules at room temperature,” *Faraday Discussions*, vol. 153, p. 51, 2011.
- [88] J. R. Lakowicz, “Topics in Fluorescence Spectroscopy: Volume 5: Nonlinear and Two-Photon-Induced Fluorescence,” 1994.
- [89] B. Friedrich and D. Herschbach, “Polarization of molecules induced by intense nonresonant laser fields,” *The Journal of Physical Chemistry*, 1995.
- [90] F. Rosca-Pruna and M. Vrakking, “Experimental Observation of Revival Structures in Picosecond Laser-Induced Alignment of I<sub>2</sub>,” *Physical Review Letters*, vol. 87, p. 153902, Sept. 2001.
- [91] F. Xue, “MULTI-OBJECTIVE DIFFERENTIAL EVOLUTION: THEORY AND APPLICATIONS,” *Rensselaer Polytechnic Institute*, pp. 1–159, Sept. 2004.
- [92] N. Xu, J. Li, J. Li, Z. Zhang, and Q. Fan, “Polarization Detection of Molecular Alignment Using Femtosecond Laser Pulse,” in *Proceedings of the 2012 Second . . .*, 2012.

- 
- [93] E. Hertz, A. Rouzée, S. Guérin, B. Lavorel, and O. Faucher, “Optimization of field-free molecular alignment by phase-shaped laser pulses,” *Physical Review A*, vol. 75, p. 031403, Mar. 2007.
- [94] T. Suzuki, Y. Sugawara, S. Minemoto, and H. Sakai, “Optimal Control of Nonadiabatic Alignment of Rotationally Cold N<sub>2</sub> Molecules with the Feedback of Degree of Alignment,” *Physical Review Letters*, vol. 100, p. 033603, Jan. 2008.
- [95] V. Renard, M. Renard, S. Guérin, Y. Pashayan, B. Lavorel, O. Faucher, and H. Jauslin, “Postpulse Molecular Alignment Measured by a Weak Field Polarization Technique,” *Physical Review Letters*, vol. 90, p. 153601, Apr. 2003.
- [96] V. Lorient, E. Hertz, O. Faucher, and B. Lavorel, “Measurement of high order Kerr refractive index of major air components: erratum,” *Optics Express*, vol. 18, no. 3, pp. 3011–3012, 2010.